

FUEL REFORMING SYSTEM

Patent number: JP2002160904

Publication date: 2002-06-04

Inventor: SHIMAZU TAKASHI; IGUCHI SATORU; AOYAMA SATOSHI; NUMATA KOICHI; KUNITAKE KAZUHISA; NISHIKAWA TAKESHI; KUBO SHUICHI; YAMAZAKI SATORU

Applicant: TOYOTA MOTOR CORP.; TOYOTA CENTRAL RES & DEV

Classification:

- international: C01B3/38; C10L1/00; C10L1/04; H01M8/04; H01M8/06; H01M8/10

- european:

Application number: JP20010002518 20010110

Priority number(s): JP20000277973 20000913; JP20010002518 20010110

Also published as:



EP1188712 (A2)

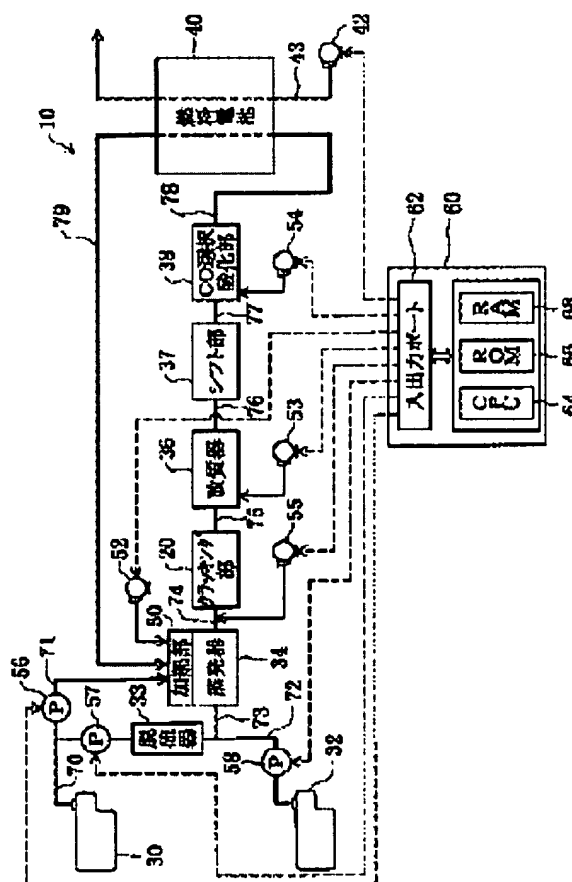
US6783877 (B2)

US2002031690 (A1)

EP1188712 (A3)

Abstract of JP2002160904

PROBLEM TO BE SOLVED: To restrain disadvantage caused by using higher hydrocarbon base fuel as a feedstock for a reforming reaction. **SOLUTION:** The fuel cell unit 10 is equipped with a cracking section 20 on the upstream side of the reforming section 36. When gasoline as a hydrocarbon fuel and oxygen are supplied to the cracking section 20, gasoline is partly burned to reduce heat by which a cracking reaction of gasoline progresses and hydrocarbons with a smaller number of carbon atoms are formed. These hydrocarbons are supplied to the reforming unit 36 and used for a reforming reaction.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

BEST AVAILABLE COPY

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-160904

(P2002-160904A)

(43) 公開日 平成14年6月4日 (2002. 6. 4)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テ-マ-ト*(参考)
C 0 1 B	3/38	C 0 1 B 3/38	4 G 0 4 0
C 1 0 L	1/00	C 1 0 L 1/00	4 G 1 4 0
	1/04	1/04	4 H 0 1 3
H 0 1 M	8/04	H 0 1 M 8/04	X 5 H 0 2 6
	8/06	8/06	G 5 H 0 2 7
審査請求 未請求 請求項の数55 OL (全 39 頁) 最終頁に続く			

審査請求 未請求 請求項の数55 O L (全 39 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2001-2518 (P2001-2518)

(22) 出願日 平成13年1月10日 (2001. 1. 10)

(31) 優先権主張番号 特願2000-277973 (P2000-277973)

(32) 優先日 平成12年9月13日 (2000. 9. 13)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(71) 出願人 000003609

株式会社豊田中央研究所

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地の1

(72) 発明者 志満津 孝

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74) 代理人 100096817

弁理士 五十嵐 孝雄 (外3名)

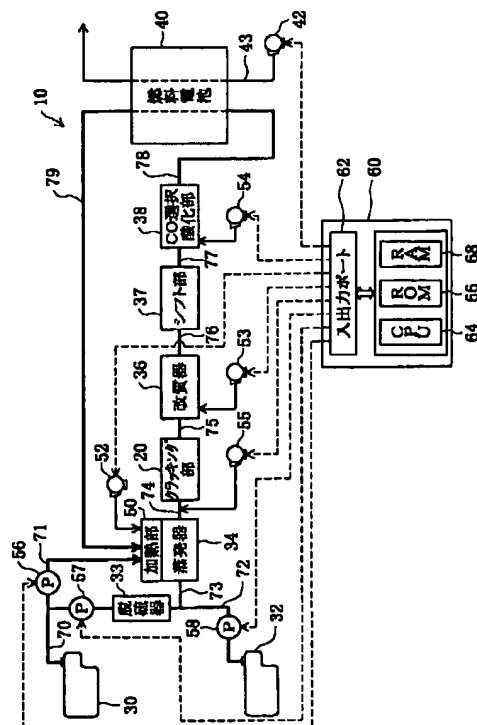
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料改質装置

(57) 【要約】

【課題】 改質反応の原料として高級炭化水素系燃料を用いることによって生じる不都合を抑える。

【解決手段】 燃料電池装置10は、改質器36の上流側にクラッキング部20を備えている。炭化水素系燃料であるガソリンと酸素とがクラッキング部20に供給されると、ガソリンの一部が燃焼すると共に、この燃焼反応で生じた熱を用いてガソリンの分解反応が進行し、ガソリンは、より炭素数の小さな炭化水素となる。ガソリンを熱分解して成る炭素数の小さな炭化水素は、改質器36に供給されて、改質反応に供される。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 改質反応を利用して炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する燃料改質装置であって、第 1 の炭化水素系燃料の供給を受け、該第 1 の炭化水素系燃料を分解して、より炭素数の小さい第 2 の炭化水素系燃料を生成する燃料分解部と、前記改質反応を促進する改質触媒を備え、前記燃料分解部から前記第 2 の炭化水素系燃料の供給を受け、前記改質反応により該第 2 の炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する改質器とを備える燃料改質装置。

【請求項 2】 前記燃料分解部で進行する前記炭化水素系燃料の分解反応は、熱分解であることを特徴とする請求項 1 記載の燃料改質装置。

【請求項 3】 請求項 2 記載の燃料改質装置であって、前記燃料分解部に対して酸素を供給する酸素供給手段をさらに備え、前記燃料分解部は、前記酸素供給手段から供給される酸素を用いて前記第 1 の炭化水素系燃料の一部を燃焼させると共に、該燃焼によって生じた熱を利用して、前記第 1 の炭化水素系燃料の残りを熱分解することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項 4】 前記燃料分解部は、前記第 1 の炭化水素系燃料を分解する際に、前記第 1 の炭化水素系燃料の分解に伴う煤の形成を抑えつつ、前記第 1 の炭化水素系燃料の分解反応が所望の状態で行進するよう、前記燃料分解部内での反応条件を制御する制御手段を備えることを特徴とする請求項 3 記載の燃料改質装置。

【請求項 5】 前記制御手段は、前記燃料分解部内での反応条件として、前記燃料分解部内で行進する反応全体の速度を、前記燃料分解部に供給される前記第 1 の炭化水素系燃料の量に応じて制御することを特徴とする請求項 4 記載の燃料改質装置。

【請求項 6】 前記制御手段は、前記第 1 の炭化水素系燃料が含有する炭素量に対する前記燃料分解部に供給される酸素量の割合を制御することによって、前記反応全体の速度を制御することを特徴とする請求項 5 記載の燃料改質装置。

【請求項 7】 前記制御手段は、前記燃料分解部内の温度を制御することによって、前記反応全体の速度を制御することを特徴とする請求項 5 記載の燃料改質装置。

【請求項 8】 前記制御手段は、前記燃料分解部に供給されるガスの温度を制御することによって、前記燃料分解部内の温度を制御することを特徴とする請求項 7 記載の燃料改質装置。

【請求項 9】 請求項 8 記載の燃料改質装置であって、前記燃料分解部に供給されるガスは、前記第 1 の炭化水素系燃料のガスと酸素とを含む複数種類のガスであり、前記制御手段は、前記燃料分解部に供給される前記複数種類のガスのうち、少なくとも一種類のガスの温度を制御することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項 10】 前記制御手段は、前記燃料分解部内での反応条件として、前記燃料分解部における滞留時間を、前記燃料分解部に供給される前記第 1 の炭化水素系燃料の量に応じて制御することを特徴とする請求項 4 記載の燃料改質装置。

【請求項 11】 前記制御手段は、前記燃料分解部内の圧力を制御することによって、前記滞留時間を制御することを特徴とする請求項 10 記載の燃料改質装置。

【請求項 12】 請求項 10 記載の燃料改質装置であって、

前記燃料分解部に対して水蒸気を供給する水蒸気供給手段をさらに備え、

前記制御手段は、前記第 1 の炭化水素系燃料が含有する炭素量に対する前記燃料分解部に供給される水蒸気量の割合を制御することによって、前記滞留時間を制御することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項 13】 前記制御手段は、前記燃料分解部において前記第 1 の炭化水素系燃料を用いた反応が実際に行進する空間の容積を制御することによって、前記滞留時間を制御することを特徴とする請求項 12 記載の燃料改質装置。

【請求項 14】 請求項 4 記載の燃料改質装置であって、

前記燃料分解部は、前記第 1 の炭化水素系燃料をその内部に通過させつつ、該第 1 の炭化水素系燃料を熱分解して前記第 2 の炭化水素系燃料を生成し、前記制御手段は、前記燃料分解部内部の所定の部位に対して、前記燃料分解部の内部温度よりも低温である反応停止ガスを供給して、前記所定の部位よりも下流側において、煤形成につながる非所望の反応の進行を抑えることを特徴とする燃料改質装置。

【請求項 15】 前記反応停止ガスは、空気および／または水蒸気であることを特徴とする請求項 14 記載の燃料改質装置。

【請求項 16】 請求項 14 記載の燃料改質装置であって、

前記燃料分解部内の所定の部位に水を噴霧する水噴霧手段をさらに備え、

前記反応停止ガスは、前記水噴霧手段によって噴霧された水が前記燃料分解部内で気化して成る水蒸気であることを特徴とする燃料改質装置。

【請求項 17】 前記燃料分解部は、ガスの流れ方向の温度分布状態を平均化する温度分布状態平均化手段を備える請求項 3 記載の燃料改質装置。

【請求項 18】 前記温度分布状態平均化手段は、前記燃料分解部において、前記第 1 の炭化水素系燃料を燃焼させる燃焼反応が活発に行進する領域で生じた熱を、前記燃焼反応の活性がより低い領域に伝える伝熱手段であることを特徴とする請求項 17 記載の燃料改質装置。

【請求項 19】 請求項 17 記載の燃料改質装置であって

て、

前記温度分布状態平均化手段は、所定量の前記第1の炭化水素系燃料を前記燃料分解部に供給する際に、前記燃料分解部内のガスの流れ方向に沿って複数箇所に分割して供給する第1の分割供給手段であることを特徴とする燃料改質装置。

【請求項20】 請求項17記載の燃料改質装置であって、

前記温度分布状態平均化手段は、所定量の酸素を前記燃料分解部に供給する際に、前記燃料分解部内のガスの流れ方向に沿って複数箇所に分割して供給する第2の分割供給手段であることを特徴とする燃料改質装置。

【請求項21】 前記燃料分解部は、前記第1の炭化水素系燃料を分解する際に、前記第1の炭化水素系燃料の分解に伴う煤の形成を抑えつつ、前記第1の炭化水素系燃料の分解反応が所望の状態で行進するよう、前記燃料分解部内での反応条件を制御する制御手段を備えることを特徴とする請求項1または2記載の燃料改質装置。

【請求項22】 前記燃料分解部は、前記第1の炭化水素系燃料を分解する反応を促進する触媒を備える請求項1ないし21いずれか記載の燃料改質装置。

【請求項23】 前記燃料分解部は、前記第1の炭化水素系燃料を分解する反応を促進するための低温プラズマを発生するプラズマ発生部を備える請求項1ないし21いずれか記載の燃料改質装置。

【請求項24】 前記第1の炭化水素系燃料は、炭素数が値4以上の高級炭化水素系燃料であることを特徴とする請求項1ないし23いずれか記載の燃料改質装置。

【請求項25】 前記高級炭化水素系燃料は、ガソリン、ナフサ、軽油から選択される炭化水素系燃料であることを特徴とする請求項24記載の燃料改質装置。

【請求項26】 前記改質器に対して、前記燃料分解部から供給される前記第2の炭化水素系燃料を含有するガスとは別個に、酸素を含有するガスと水蒸気とのうちの少なくとも一方を供給する追加供給手段を備える請求項1ないし25いずれか記載の燃料改質装置。

【請求項27】 請求項26記載の燃料改質装置であって、

前記追加供給手段は、前記改質器に対して水蒸気を供給し、

前記追加供給手段によって前記改質器に供給される水蒸気は、液体の状態の前記改質器内部に噴霧され、前記燃料分解部から供給される前記第2の炭化水素系燃料を含有するガスが有する熱によって気化されて成ることを特徴とする燃料改質装置。

【請求項28】 請求項3記載の燃料改質装置であって、

前記酸素供給手段は、

前記燃料分解部の上流側に酸素を供給することによ

って、前記第1の炭化水素系燃料を燃焼させて前記分解反

応を開始させる第1の酸素供給手段と、

前記燃料分解部のより下流側で、前記第1の炭化水素系燃料を燃焼させる反応に供する酸素をさらに追加する第2の酸素供給手段とを備える燃料改質装置。

【請求項29】 請求項3記載の燃料改質装置であって、

燃焼反応によって熱を発生し、該発生した熱によって、前記第1の炭化水素系燃料を前記燃料分解部に供給するのに先立って加熱する加熱部と、

前記燃焼反応によって生じて前記加熱部から排出される燃焼排ガスを、前記燃料分解部に供給する燃焼排ガス供給手段とをさらに備える燃料改質装置。

【請求項30】 前記燃料分解部の入り口部付近における内部温度の昇温を促進する昇温促進手段をさらに備えることを特徴とする請求項2記載の燃料改質装置。

【請求項31】 前記燃料分解部に供給するのに先立って、該燃料分解部に供給する流体同士を気体の状態で混合する混合部を、さらに備える請求項1ないし30いずれか記載の燃料改質装置。

【請求項32】 改質反応を利用して炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する燃料改質装置であって、前記改質反応を促進する改質触媒を備える改質器と、前記炭化水素系燃料を前記改質器に供給する供給手段とを備え、

前記改質器は、前記改質触媒の働きによらずに気相中で進行する非所望の気相反応の活性を十分に抑えつつ、前記改質触媒表面で進行する前記改質反応の活性を確保することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項33】 請求項32記載の燃料改質装置であって、

前記改質器は、

表面に前記改質触媒を担持する多孔質体を備え、

前記多孔質体として十分に目の細かい多孔質体を用いることによって、前記気相反応を抑制することを特徴とする燃料改質装置。

【請求項34】 前記改質器は、該改質器内を前記炭化水素系燃料が前記改質反応に供されながら通過する流路長と、前記改質器内を前記炭化水素系燃料が通過する流路断面の直径との比の値を、十分に小さくすることによって、前記気相反応を抑制することを特徴とする請求項32記載の燃料改質装置。

【請求項35】 前記炭化水素系燃料は、炭素数が値4以上の高級炭化水素系燃料であることを特徴とする請求項32ないし34いずれか記載の燃料改質装置。

【請求項36】 前記炭化水素系燃料は、ガソリン、ナフサ、軽油から選択される炭化水素系燃料であることを特徴とする請求項35記載の燃料改質装置。

【請求項37】 前記改質器に供給するのに先立って、該改質器に供給する流体同士を気体の状態で混合する混合部を、さらに備える請求項32ないし36いずれか記

載の燃料改質装置。

【請求項 3 8】 電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、請求項 1 ないし 3 7 いずれか記載の燃料改質装置を備え、該燃料改質装置が生成した前記水素リッチガスを利用して、前記燃料電池において前記電気化学反応を進行する燃料電池装置。

【請求項 3 9】 電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、請求項 3 記載の燃料改質装置を備え、該燃料改質装置が生成した前記水素リッチガスを利用して、前記燃料電池において前記電気化学反応を進行すると共に、前記酸素供給手段は、前記燃料分解部に供給すべき酸素のうちの少なくとも一部を供給するために、前記燃料電池で進行する前記電気化学反応に供された後に前記燃料電池のカソード側から排出されるカソードオフガスを、前記燃料分解部に供給することを特徴とする燃料電池装置。

【請求項 4 0】 請求項 3 9 記載の燃料電池装置であって、前記酸素供給手段は、前記燃料分解部に対して酸素を供給するために、前記カソードオフガスと空気との両方を前記燃料分解部に供給することが可能であり、前記燃料分解部に供給する前記カソードオフガス量と空気量との割合を制御する酸化ガス制御手段を備える燃料電池装置。

【請求項 4 1】 電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、請求項 3 記載の燃料改質装置を備え、該燃料改質装置が生成した前記水素リッチガスを利用して、前記燃料電池において前記電気化学反応を進行すると共に、前記燃料改質装置は、前記燃料電池で進行する前記電気化学反応に供された後に前記燃料電池のアノード側から排出されるアノードオフガスを、前記燃料分解部に対して供給するアノードオフガス供給手段をさらに備える燃料電池装置。

【請求項 4 2】 前記アノードオフガス供給手段は、前記燃料分解部に供給される前記第 1 の炭化水素系燃料の量に応じて、前記燃料分解部に供給する前記アノードオフガスの量を制御するアノードオフガス量制御手段を備える請求項 4 1 記載の燃料電池装置。

【請求項 4 3】 電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、請求項 2 記載の燃料改質装置を備え、該燃料改質装置が生成した前記水素リッチガスを利用して、前記燃料電池において前記電気化学反応を進行する

と共に、

前記燃料分解部は、前記燃料電池装置内における所定の部位から排出される所定の高温流体との間で熱交換を行なうことが可能となる熱交換部を備え、前記所定の高温流体との間で熱交換を行なうことで得られる熱を利用して、前記熱分解を行なうことを特徴とする燃料電池装置。

【請求項 4 4】 請求項 4 3 記載の燃料電池装置であって、前記燃料分解部において分解されるのと同種の前記第 1 の炭化水素系燃料を完全酸化する完全酸化部をさらに備え、前記高温流体は、前記完全酸化部において前記第 1 の炭化水素系燃料を完全酸化させて得られる完全酸化ガスであることを特徴とする燃料電池装置。

【請求項 4 5】 前記高温流体は、前記燃料電池のアノード側から排出されるアノードオフガスに酸素を供給することによって、前記アノードオフガス中の水素を燃焼させて得られるオフガス燃焼ガスであることを特徴とする請求項 4 3 記載の燃料電池装置。

【請求項 4 6】 請求項 4 3 記載の燃料電池装置であって、燃焼反応によって熱を発生し、該発生した熱によって、前記第 1 の炭化水素系燃料を前記燃料分解部に供給するのに先立って加熱する加熱部をさらに備え、前記高温流体は、前記加熱部における前記燃焼反応によって生成される燃焼排ガスであることを特徴とする燃料電池装置。

【請求項 4 7】 電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、第 1 の炭化水素系燃料を分解して、より炭素数の小さい第 2 の炭化水素系燃料を生成する燃料分解部を備え、前記燃料電池は、前記燃料分解部から前記第 2 の炭化水素系燃料を供給されて、該第 2 の炭化水素系燃料を利用して電気化学反応を進行することを特徴とする燃料電池装置。

【請求項 4 8】 請求項 4 7 記載の燃料電池装置であって、前記燃料電池は、高温型燃料電池であり、前記燃料分解部は、熱分解によって前記第 1 の炭化水素系燃料を分解すると共に、前記燃料電池で発生する熱を利用して前記熱分解を進行することを特徴とする燃料電池装置。

【請求項 4 9】 前記燃料電池は、電解質を移動するイオン種が酸化物イオンであることを特徴とする請求項 4 8 記載の燃料電池装置。

【請求項 5 0】 前記第 1 の炭化水素系燃料は、炭素数が値 4 以上の高級炭化水素系燃料であることを特徴とする請求項 4 7 ないし 4 9 いずれか記載の燃料電池装置。

【請求項 5 1】 改質反応を利用して炭化水素系燃料が

ら水素リッチガスを生成する燃料改質方法であって、

(a) 第1の炭化水素化合物を分解して、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料を生成する工程と、

(b) 前記(a)工程で生成した前記第2の炭化水素系燃料から、前記改質反応によって水素リッチガスを生成する工程とを備えることを特徴とする燃料改質方法。

【請求項52】 前記(a)工程は、熱分解によって前記第1の炭化水素系燃料を分解することを特徴とする請求項51記載の燃料改質方法。

【請求項53】 請求項52記載の燃料改質方法であって、

前記(a)工程は、

(a-1) 前記分解する第1の炭化水素系燃料と同種の炭化水素系燃料を燃焼させる工程と、

(a-2) 前記(a-1)工程の燃焼で生じた熱を利用して、前記第1の炭化水素系燃料を熱分解する工程とを備えることを特徴とする燃料改質方法。

【請求項54】 改質反応を利用して炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する燃料改質方法であって、前記改質反応は、

前記改質反応を促進する活性を有する改質触媒表面で進行すると共に、

前記改質触媒の働きによらずに気相中で進行する非所望の気相反応の活性を十分に抑えつつ、前記改質反応の活性が確保されていることを特徴とする燃料改質方法。

【請求項55】 燃料電池装置の始動方法であって、前記燃料電池装置は、

第1の炭化水素系燃料と酸素の供給を受け、該酸素を用いて前記第1の炭化水素の一部を燃焼させると共に、該燃焼によって生じた熱を利用して、前記第1の炭化水素系燃料の残りを熱分解し、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料を生成する燃料分解部と、

前記燃料分解部から前記第2の炭化水素系燃料を供給されて、該第2の炭化水素系燃料を利用して電気化学反応を進行する燃料電池とを備え、

前記燃料電池が所定の温度に昇温するまでは、前記燃料分解部に供給する前記第1の炭化水素系燃料に対する前記酸素の割合を多くすることによって、前記燃料分解部内で前記第1の炭化水素系燃料の部分酸化反応を十分に進行させると共に、前記燃料電池内のアノード側触媒上で、前記部分酸化反応で生じた水素および一酸化炭素の燃焼反応を進行させることを特徴とする燃料電池装置の始動方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料改質装置に関し、詳しくは、炭化水素系燃料を改質して水素リッチガスを生成する燃料改質装置に関する。

【0002】

【従来の技術】従来、炭化水素系燃料を用いて、改質反

応によって水素リッチガスの生成が行なわれてきた。水素リッチガスを生成するための炭化水素系燃料としては、メタンを主成分とする天然ガスや、メタノールなどのアルコールや、ガソリンなど種々のものが用いられており、改質反応により水素リッチガスを生成する際には、用いる原燃料に応じて、改質反応の際に使用する改質触媒や改質反応温度を適宜選択する。このようにして生成した水素リッチガスは、例えば、燃料電池に供給されて、電気化学反応により起電力を得る際の燃料ガスとして用いられる。

【0003】このような燃料の改質を行なう装置としては、例えば、特開平11-79703号公報に、改質の燃料としてガソリンを用い、改質器内で水蒸気改質反応と共に部分酸化反応を進行させて水素リッチガスを生成する技術が記載されている。ガソリンは、市場に広く流通している燃料であり、水素リッチガスを生成するための燃料としては、入手が容易であるという点で非常に優れている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、ガソリンなどの高級炭化水素系燃料を改質反応の燃料として用いる場合には、改質反応の場である改質器内において煤が形成され易いという問題があった。改質器内で煤が生成されると、改質器が備える改質触媒の表面をこの煤が覆うことにより、改質反応の活性が次第に低下してしまうという不都合を生じる。したがって、ガソリンなどの高級炭化水素系燃料を改質反応の燃料として用いる場合には、煤の形成を抑えて、改質触媒の表面を煤が覆うことによって改質反応の進行と共に改質反応の活性が次第に低下してしまうのを防止する構成が望まれていた。

【0005】さらに、ガソリンなどの高級炭化水素系燃料を改質反応の燃料として用いる場合には、メタノールやメタン(天然ガス)など、より炭素数の小さい分子から成る周知の他の炭化水素系燃料を用いる場合に比べて、改質反応を充分に行なわせるのが困難で、未反応の燃料が残留しやすいという問題があった。また、ガソリンなどの高級炭化水素系燃料は、メタノールなどに比べて高い温度で改質反応を行なう必要があるが、改質反応の温度を高くするほど、改質反応と共に、気相中では一酸化炭素やメタンなどを生じる非所望の反応の活性が上昇してしまう。したがって、改質反応を充分に行なわせようすると、かえって上記一酸化炭素やメタンなど非所望の成分の生成を促進してしまうおそれがあった。

【0006】本発明の燃料改質装置は、こうした問題を解決し、改質反応によって水素リッチガスを生成する際に、改質反応の原料としてガソリンなどの高級炭化水素系燃料を用いることによって生じる不都合を抑えることを目的としてなされ、次の構成を採った。

【0007】

【課題を解決するための手段およびその作用・効果】本

発明の第1の燃料改質装置は、改質反応を利用して炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する燃料改質装置であって、第1の炭化水素系燃料の供給を受け、該第1の炭化水素系燃料を分解して、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料を生成する燃料分解部と、前記改質反応を促進する改質触媒を備え、前記燃料分解部から前記第2の炭化水素系燃料の供給を受け、前記改質反応により該第2の炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する改質器とを備えることを要旨とする。

【0008】以上のように構成された本発明の第1の燃料改質装置は、燃料分解部において、第1の炭化水素系燃料を分解して、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料を生成する。改質器は、改質反応を促進する改質触媒を備え、前記燃料分解部から前記第2の炭化水素系燃料の供給を受け、前記改質反応により該第2の炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する。

【0009】また、本発明の第1の燃料改質方法は、改質反応を利用して炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する燃料改質方法であって、(a)第1の炭化水素化合物を分解して、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料を生成する工程と、(b)前記(a)工程で生成した前記第2の炭化水素系燃料から、前記改質反応によって水素リッチガスを生成する工程とを備えることを要旨とする。

【0010】このような本発明の第1の燃料改質装置、および、本発明の第1の燃料改質方法によれば、第1の炭化水素系燃料を、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料に分解した後に、改質反応に供する。したがって、改質反応が進行する際に、改質反応に供する炭化水素系燃料の炭素数が大きいことに起因して煤が形成されるのを抑えることができる。煤形成が抑えられることにより、改質触媒の表面を煤が覆って改質反応の活性を低下させてしまうのを防止することができる。また、改質器で進行する改質反応の効率を向上させることができる。これによって、改質反応をより低い温度で進行させたり、改質器をより小型化することが可能となる。また、炭化水素系燃料は、その炭素数が大きいほど、改質触媒表面に吸着して触媒被毒を起こしやすい。改質器に供給するのに先立って炭化水素系燃料を分解することにより、炭化水素系燃料が触媒表面に吸着することで改質反応の活性が低下してしまうのを防止することができる。

【0011】なお、ここで炭化水素系燃料とは、炭素と水素のみから成る炭化水素だけでなく、炭素と水素以外の原子を含有する分子を含有していてもよく、広く炭化水素系化合物を指すものとする。改質反応に供することで水素リッチガスを生成可能な燃料であれば、改質反応に先立って炭素数がより小さくなるように分解することで、既述した効果を得ることができる。

【0012】本発明の第1の燃料改質装置において、前

記燃料分解部で進行する前記炭化水素系燃料の分解反応は、熱分解であることとしてもよい。

【0013】あるいは、本発明の第1の燃料改質方法において、前記(a)工程は、熱分解によって前記第1の炭化水素系燃料を分解することとしてもよい。

【0014】また、上記本発明の第1の燃料改質装置において、前記燃料分解部に対して酸素を供給する酸素供給手段をさらに備え、前記燃料分解部は、前記酸素供給手段から供給される酸素を用いて前記第1の炭化水素系燃料の一部を燃焼させると共に、該燃焼によって生じた熱を利用して、前記第1の炭化水素系燃料の残りを熱分解することとしてもよい。

【0015】もとより、前記第1の炭化水素系燃料の一部を燃焼させるというのは、前記第1の炭化水素系燃料を構成する分子のうちの一部の分子は、燃焼反応のみに供されるということを表わすものではない。同様に、前記第1の炭化水素系燃料の残りを熱分解するというのは、前記第1の炭化水素系燃料を構成する分子のうちの残りの分子は、熱分解反応のみに供される、ということを表わすものでもない。第1の炭化水素系燃料を構成する炭素数の大きな所定の分子において、その一部は燃焼反応を受けて一酸化炭素や二酸化炭素を生じ、残りの部分は分解してより小さな炭化水素を生じる反応が進行するといった反応が進行することを含んでいる。前記燃料分解部に前記第1の炭化水素系燃料と酸素とを供給したときに、燃料分解部内で炭化水素系燃料の燃焼反応と分解反応とが進行し、最終的に、上記第1の炭化水素系燃料よりも炭素数の小さな分子から成る第2の炭化水素系燃料が生成されればよい。

【0016】また、酸素供給手段によって供給される酸素は、略全部が上記燃焼反応に用いられることとしても良いし、一部のみを燃焼反応に用いて、残りの酸素は、第2の炭化水素系燃料と共に燃料分解部から改質器に供給されることとしても良い。

【0017】あるいは、上記本発明の第1の燃料改質方法において、前記(a)工程は、(a-1)前記分解する第1の炭化水素系燃料と同種の炭化水素系燃料を燃焼させる工程と、(a-2)前記(a-1)工程の燃焼で生じた熱を利用して、前記第1の炭化水素系燃料を熱分解する工程とを備えることとしてもよい。

【0018】上記本発明の第1の燃料改質装置において、前記燃料分解部は、前記第1の炭化水素系燃料を分解する際に、前記第1の炭化水素系燃料の分解に伴う煤の形成を抑えつつ、前記第1の炭化水素系燃料の分解反応が所望の状態で行進するよう、前記燃料分解部内での反応条件を制御する制御手段を備えることとしても良い。

【0019】このような構成とすれば、燃料分解部において煤の形成が抑えられるため、燃料分解部で生じた煤が下流側の改質器などの所定の触媒を有する反応槽で不

都合を生じることがある。例えば、燃料分解部で生じた煤が改質器に供給されると、改質触媒の表面に吸着して改質反応の活性を低下してしまうおそれがあるが、このような不都合を防ぐことができる。また、燃料分解部における煤の形成を抑えることによって、燃料改質装置全体における燃料改質の効率を向上させることができる。すなわち、炭化水素系燃料を構成する炭素のうち、煤となってしまったものは水素生成に寄与することができないが、煤となることなく酸化されて一酸化炭素となった炭素や、煤となることなく再び水素と結合して炭化水素となった炭素は、改質器において水素の生成に寄与することができる。したがって、燃料分解部において煤形成を抑えることによって、最終的により多くの水素を生成することが可能となる。

【0020】上記燃料改質装置において、前記制御手段は、前記燃料分解部内での反応条件として、前記燃料分解部内で進行する反応全体の速度を、前記燃料分解部に供給される前記第1の炭化水素系燃料の量に応じて制御することとしてもよい。

【0021】所望量の水素リッチガスを生成するために要する量の第1の炭化水素系燃料を燃料分解部に供給する際に、水素リッチガスの所望量が変動し、燃料分解部に供給される第1の炭化水素系燃料の量が変動する場合には、燃料分解部内で煤形成などの不都合が生じるおそれがある。すなわち、供給される第1の炭化水素系燃料量が変動することで、前記燃料分解部内で進行する反応全体の速度が所望の状態よりも過剰となった場合には、燃料分解部内において酸化反応で要する酸素が不足して、煤がより多く形成されてしまう。また、前記燃料分解部内で進行する反応全体の速度が所望の状態よりも不十分となった場合には、前記燃料分解部において前記第1の炭化水素系燃料を分解する程度が不十分となって、改質反応に先立って炭化水素系燃料を分解することによる効果を充分に得ることができなくなるおそれがある。したがって、燃料分解部に供給される炭化水素系燃料の量が変動する場合にも、この変動に応じて、燃料分解部内で進行する反応全体の速度を制御することによって、燃料分解部内で非所望の煤の形成を抑え、第1の炭化水素系燃料が分解される程度を充分に確保することが可能となる。

【0022】ここで、前記制御手段は、前記第1の炭化水素系燃料が含有する炭素量に対する前記燃料分解部に供給される酸素量の割合を制御することによって、前記反応全体の速度を制御することとしてもよい。

【0023】上記酸素量の割合を大きくしたときには、燃料分解部において燃焼反応が活発化し、これによって分解反応も促進され、燃料分解部内で進行する反応全体の速度が速くなる。燃焼反応が活発化すると、燃料分解部内の温度が上昇するため、このような温度上昇によっても、上記反応全体の速度が速められる。上記酸素量の

割合を小さくしたときには、燃料分解部において燃焼反応が不活発化し、燃料分解部内で進行する反応全体の速度は遅くなる。

【0024】また、前記制御手段は、前記燃料分解部内の温度を制御することによって、前記反応全体の速度を制御することとしてもよい。燃料分解部内の温度を上昇させることによって、前記反応全体の速度を速めることができ、燃料分解部内の温度を低下させることによって、前記反応全体の速度を遅くすることができる。

【0025】ここで、前記制御手段は、前記燃料分解部に供給されるガスの温度を制御することによって、前記燃料分解部内の温度を制御することとしてもよい。燃料分解部に供給されるガスの温度を上昇させることによって、燃料分解部内の温度を上昇させることが可能となり、燃料分解部に供給されるガスの温度を低下させることによって、燃料分解部内の温度を低下させることが可能となる。

【0026】このとき、前記燃料分解部に供給されるガスは、前記第1の炭化水素系燃料のガスと酸素を含む複数種類のガスであり、前記制御手段は、前記燃料分解部に供給される前記複数種類のガスのうち、少なくとも一種類のガスの温度を制御することとしてもよい。

【0027】前記燃料分解部に供給される前記複数種類のガスのうち、少なくとも一種類のガスの温度を制御して、これを昇降させることによって、燃料分解部内の温度を昇降させることが可能となる。

【0028】また、上記燃料改質装置において、前記制御手段は、前記燃料分解部内での反応条件として、前記燃料分解部における滞留時間を、前記燃料分解部に供給される前記第1の炭化水素系燃料の量に応じて制御することとしてもよい。

【0029】所望量の水素リッチガスを生成するために要する量の第1の炭化水素系燃料を燃料分解部に供給する際に、水素リッチガスの所望量が変動し、燃料分解部に供給される第1の炭化水素系燃料の量が変動する場合には、燃料分解部内で煤形成などの不都合が生じるおそれがある。すなわち、供給される第1の炭化水素系燃料量が変動することで、燃料分解部において滞留時間が所望の状態よりも長くなるときには、燃料分解部内で燃焼反応に要する酸素が不足するようになり、煤がより多く形成されるようになる。また、燃料分解部において滞留時間が所望の状態よりも短くなるときには、炭化水素系燃料を分解する程度が不十分となるおそれがある。したがって、燃料分解部に供給される炭化水素系燃料の量が変動する場合にも、この変動に応じて、燃料分解部における滞留時間を制御することによって、燃料分解部内で非所望の煤の形成を抑え、第1の炭化水素系燃料が分解される程度を充分に確保することが可能となる。

【0030】ここで、前記制御手段は、前記燃料分解部内の圧力を制御することによって、前記滞留時間を制御

することとしてもよい。燃料分解部内の圧力を高くすることによって滞留時間をより長くすることができ、燃料分解部内の圧力を低くすることによって滞留時間をより短くすることができる。

【0031】このような燃料改質装置において、前記燃料分解部に対して水蒸気を供給する水蒸気供給手段をさらに備え、前記制御手段は、前記第1の炭化水素系燃料が含有する炭素量に対する前記燃料分解部に供給される水蒸気量の割合を制御することによって、前記滞留時間を制御することとしてもよい。

【0032】上記水蒸気量の割合を多くすることによって、燃料分解部に供給されるガスの総量が増え、滞留時間をより短くすることができる。また、上記水蒸気量の割合を少なくすることによって、燃料分解部に供給されるガスの総量が減り、滞留時間をより長くすることができる。

【0033】また、前記制御手段は、前記燃料分解部において前記第1の炭化水素系燃料を用いた反応が実際に進行する空間の容積を制御することによって、前記滞留時間を制御することとしてもよい。上記第1の炭化水素系燃料を用いた反応が実際に進行する空間の容積を大きくすることによって、滞留時間をより長くすることができる。また、上記空間の容積を小さくすることによって、滞留時間をより短くすることができる。

【0034】また、上記燃料改質装置において、前記燃料分解部は、前記第1の炭化水素系燃料をその内部に通過させつつ、該第1の炭化水素系燃料を熱分解して前記第2の炭化水素系燃料を生成し、前記制御手段は、前記燃料分解部内部の所定の部位に対して、前記燃料分解部の内部温度よりも低温である反応停止ガスを供給して、前記所定の部位よりも下流側において、煤形成につながる非所望の反応の進行を抑えることとしてもよい。

【0035】このような構成とすれば、煤形成につながる非所望の反応の活性を抑えることで、煤形成に起因する不都合が生じるのを防止することができる。ここで、燃料分解部に対して上記低温の反応停止ガスを供給したときには、上記所定の部位よりも下流側が上記反応停止ガスによって降温されることで、上記非所望の反応の活性が十分に低下する。また、上記反応停止ガスを加えることで、上記所定の部位よりも下流側では、内部を通過するガスの流量が増加して滞留時間が短くなり、上記非所望の反応が問題となる程度に進行する前に、反応が進行しつつあるガスを燃料分解部から排出することができる。

【0036】このような燃料改質装置において、前記反応停止ガスは、空気および／または水蒸気であることとしてもよい。

【0037】また、上記した燃料改質装置において、前記燃料分解部内の所定の部位に水を噴霧する水噴霧手段をさらに備え、前記反応停止ガスは、前記水噴霧手段に

よって噴霧された水が前記燃料分解部内で気化して成る水蒸気であることとしてもよい。

【0038】このような構成とすれば、水蒸気を上記反応停止ガスとして用いるときに、水を気化させて水蒸気と成すために要するエネルギーを削減することができると共に、燃料分解部の内部を効果的に降温させることができる。

【0039】本発明の第1の燃料改質装置において、前記燃料分解部は、ガスの流れ方向の温度分布状態を平均化する温度分布状態平均化手段を備えることとしてもよい。このような構成とすれば、燃料分解部の内部で局部的に温度が上昇し、煤形成につながる反応が活発化してしまうのを防止することができる。また、内部温度を平均化することで、第1の炭化水素系燃料が燃焼する反応が不活発な領域においても、上記熱分解を活発化することができ、燃料分解部全体で熱分解の効率を向上させることができる。

【0040】ここで、前記温度分布状態平均化手段は、前記燃料分解部において、前記第1の炭化水素系燃料を燃焼させる燃焼反応が活発に進行する領域で生じた熱を、前記燃焼反応の活性がより低い領域に伝える伝熱手段であることとしてもよい。

【0041】また、前記温度分布状態平均化手段は、所定量の前記第1の炭化水素系燃料を前記燃料分解部に供給する際に、前記燃料分解部内のガスの流れ方向に沿って複数箇所に分割して供給する第1の分割供給手段であることとしてもよい。

【0042】あるいは、前記温度分布状態平均化手段は、所定量の酸素を前記燃料分解部に供給する際に、前記燃料分解部内のガスの流れ方向に沿って複数箇所に分割して供給する第2の分割供給手段であることとしてもよい。

【0043】本発明の第1の燃料改質装置において、前記燃料分解部は、前記第1の炭化水素系燃料を分解する反応を促進する触媒を備えることとしてもよい。このような構成とすれば、第1の炭化水素系燃料を分解する効率が向上し、燃料分解部をより小型化することが可能となる。

【0044】本発明の第1の燃料改質装置において、前記燃料分解部は、前記第1の炭化水素系燃料を分解する反応を促進するための低温プラズマを発生するプラズマ発生部を備えることとしてもよい。このプラズマ発生部は、高圧電極と誘電体とを挟んでアース極から構成されるものであり、コロナ放電または沿面放電（オゾナイザ放電）を行なわせることが可能なものである。このような構成とすれば、第1の炭化水素系燃料の分解に必要なエネルギーを電子から供給するため、低温で第1の炭化水素系燃料を分解する効果が向上し、燃料分解部での煤生成を大幅に抑制でき、供給ガスの予備加熱温度を低下させることが可能となる。

【0045】また、本発明の第1の燃料改質装置において、前記第1の炭化水素系燃料は、炭素数が値4以上の高級炭化水素系燃料であることとしてもよい。炭素数が値4以上の高級炭化水素系燃料を用いて水素リッチガスを生成する際には、改質反応の際に煤を形成しやすく、改質反応を十分に進行させることが困難である。したがって、改質反応に先立って炭化水素系燃料を分解することによる効果を顕著に得ることができる。

【0046】ここで、前記高級炭化水素系燃料は、ガソリン、ナフサ、軽油から選択される炭化水素系燃料であることとしてもよい。ガソリン、ナフサ、軽油は、入手が容易な高級炭化水素系燃料である。これらの高級炭化水素系燃料は、炭素数が値4以上で炭素鎖が比較的長い炭化水素の混合物であるが、本発明を適用し、改質反応に先立って炭化水素系燃料を分解することで、非所望量の煤を形成することなく良好に改質反応を進行させることが可能となる。

【0047】また、本発明の第1の燃料改質装置において、前記改質器に対して、前記燃料分解部から供給される前記第2の炭化水素系燃料を含有するガスとは別個に、酸素を含有するガスと水蒸気とのうちの少なくとも一方を供給する追加供給手段を備えることとしてもよい。

【0048】このような構成とすれば、燃料分解部と改質器とのそれぞれで、内部において反応が充分に良好に進行するように、供給する酸素量あるいは水蒸気量を、より最適な条件に近づくように制御することができる。

【0049】このような燃料改質装置において、前記追加供給手段は、前記改質器に対して水蒸気を供給し、前記追加供給手段によって前記改質器に供給される水蒸気は、液体の状態で前記改質器内部に噴霧され、前記燃料分解部から供給される前記第2の炭化水素系燃料を含有するガスが有する熱によって気化されてなることとしてもよい。

【0050】このような構成とすれば、改質器に水蒸気を供給する際に、供給に先立って水を気化させて水蒸気と成すために要するエネルギーを削減し、装置全体のエネルギー効率を向上させることができる。

【0051】また、本発明の第1の燃料改質装置において、前記酸素供給手段は、前記燃料分解部の上流側に酸素を供給することによって、前記第1の炭化水素系燃料を燃焼させて前記分解反応を開始させる第1の酸素供給手段と、前記燃料分解部のより下流側で、前記第1の炭化水素系燃料を燃焼させる反応に供する酸素をさらに追加する第2の酸素供給手段とを備えることとしてもよい。

【0052】このような構成とすれば、燃焼反応で生じた熱を用いて炭化水素系燃料の熱分解を行なう際に、燃料分解部内で酸素が不足するのを防止することができる。もとより、第2の酸素供給手段によって供給される

酸素を用いて燃焼する上記第1の炭化水素系燃料というのは、燃料分解部内に供給された後に所定量の燃焼反応および分解反応を進行し、含有する炭化水素系の分子においてある程度分解が行なわれている第1の炭化水素系燃料を指すものである。

【0053】また、本発明の第1の燃料改質装置において、燃焼反応によって熱を発生し、該発生した熱によって、前記第1の炭化水素系燃料を前記燃料分解部に供給するのに先立って加熱する加熱部と、前記燃焼反応によって生じて前記加熱部から排出される燃焼排ガスを、前記燃料分解部に供給する燃焼排ガス供給手段とをさらに備えることとしてもよい。

【0054】燃焼排ガスを燃料分解部に供給することによって、燃料分解部に供給するガスの総量を増やすことができる。したがって、燃料分解部に供給する燃焼排ガスを制御することによって、燃料分解部における滞留時間を制御することが可能となり、滞留時間を制御することによる既述した効果を得ることができる。なお、加熱部が行なう加熱は、例えば、炭化水素系燃料を予め熱分解に適した温度に昇温すると共に、液状の炭化水素系燃料を用いる場合には、これを予め気化するものである。また、上記燃焼排ガスは、燃料分解部の内部温度よりも高温であるため、燃焼排ガスを燃料分解部に供給することによって燃料分解部を昇温させることができる。したがって、燃料分解部に燃焼排ガスを供給する状態を制御することによって、燃料分解部の内部温度を制御することが可能となる。

【0055】本発明の第1の燃料改質装置において、前記燃料分解部の入り口部付近における内部温度の昇温を促進する昇温促進手段をさらに備えることとしてもよい。

【0056】このような構成とすれば、内部温度が昇温することによって、燃料分解部の入り口部付近において、第1の炭化水素系燃料の熱分解が直ちに活発に進行するようになる。したがって、燃料分解部で進行する熱分解の効率を向上させることができ、燃料分解部の小型化が可能となる。ここで、昇温促進手段としては、例えば、ヒータなどの加熱手段を燃料分解部の上流側に設ける構成を挙げることができる。あるいは、第1の炭化水素系燃料を完全酸化させることで熱を生じる完全酸化部を、上記燃料分解部の上流側に設けることとしても良い。

【0057】また、本発明の第1の燃料改質装置において、前記燃料分解部に供給するのに先立って、該燃料分解部に供給する流体同士を気体の状態で混合する混合部を、さらに備えることとしても良い。

【0058】このような構成とすれば、燃料分解部に供給する流体同士は、気体の状態で混合されるため、充分に均一に混合された状態で燃料分解部に供給することができる。ここで、混合部の構成としては、例えば多孔質

体によって形成して内部を通過するガスにおける物質拡散速度を向上させることとしても良いし、あるいは、内部を通過するガスを機械的に混合させる構成とすることもできる。また、燃料分解部に供給する流体のうち、混合部での混合の動作に供する前には液体の状態であるものについては、混合部で混合するのに先立って、予め別個に気化させておくこととすればよい。

【0059】本発明の第2の燃料改質装置は、改質反応を利用して炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する燃料改質装置であって、前記改質反応を促進する改質触媒を備える改質器と、前記炭化水素系燃料を前記改質器に供給する供給手段とを備え、前記改質器は、前記改質触媒の働きによらずに気相中で進行する非所望の気相反応の活性を十分に抑えつつ、前記改質触媒表面で進行する前記改質反応の活性を確保することを要旨とする。

【0060】以上のように構成された本発明の第2の燃料改質装置は、改質反応を促進する改質触媒を備える改質器において、前記改質触媒の働きによらずに気相中で進行する非所望の気相反応の活性を十分に抑えつつ、前記改質触媒上で進行する前記改質反応の活性を確保して、炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する。

【0061】また、本発明の第2の燃料改質方法は、改質反応を利用して炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する燃料改質方法であって、前記改質反応は、前記改質反応を促進する活性を有する改質触媒表面で進行すると共に、前記改質触媒の働きによらずに気相中で進行する非所望の気相反応の活性を十分に抑えつつ、前記改質反応の活性が確保されていることを要旨とする。

【0062】このような本発明の第2の燃料改質装置および燃料改質方法によれば、上記気相中で進行する非所望の反応の活性を抑えることによって、煤生成を抑えることができる。

【0063】本発明の第2の燃料改質装置において、前記改質器は、表面に前記改質触媒を担持する多孔質体を備え、前記多孔質体として十分に目の細かい多孔質体を用いることによって、前記気相反応を抑制することとしても良い。

【0064】また、本発明の第2の燃料改質装置において、前記改質器は、該改質器内を前記炭化水素系燃料が前記改質反応に供されながら通過する流路長と、前記改質器内を前記炭化水素系燃料が通過する流路断面の直径との比の値を、十分に小さくすることによって、前記気相反応を抑制することとしても良い。

【0065】このような本発明の第2の燃料改質装置において、前記炭化水素系燃料は、炭素数が値4以上の高級炭化水素系燃料であることとしても良い。

【0066】ここで、前記炭化水素系燃料は、ガソリン、ナフサ、軽油から選択される炭化水素系燃料であることとしても良い。

【0067】本発明の第2の燃料改質装置において、前

記改質器に供給するのに先立って、該改質器に供給する流体同士を気体の状態で混合する混合部を、さらに備えることとしても良い。

【0068】このような構成とすれば、改質器に供給する流体同士は、気体の状態で混合されるため、充分に均一に混合された状態で改質器に供給することができる。ここで、混合部の構成としては、例えば多孔質体によって形成して、内部を通過するガスにおける物質拡散速度を向上させることとしても良いし、あるいは、内部を通過するガスを機械的に混合させる構成とすることもできる。また、改質器に供給する流体のうち、混合部での混合の動作に供する前には液体の状態であるものについては、混合部で混合するのに先立って、予め別個に気化させておくこととすればよい。

【0069】本発明の第1の燃料電池装置は、電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、請求項1ないし20いずれか記載の燃料改質装置を備え、該燃料改質装置が生成した前記水素リッチガスを利用して、前記燃料電池において前記電気化学反応を進行することを要旨とする。

【0070】このような燃料電池装置によれば、改質反応に先立って、炭化水素系燃料を分解するため、改質器内での煤の形成を抑えることができると共に、改質器における改質反応の効率を向上させることができ、燃料電池装置としての性能を十分に確保することができる。

【0071】また、本発明の第2の燃料電池装置は、電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、請求項3記載の燃料改質装置を備え、該燃料改質装置が生成した前記水素リッチガスを利用して、前記燃料電池において前記電気化学反応を進行すると共に、前記酸素供給手段は、前記燃料分解部に供給すべき酸素のうちの少なくとも一部を供給するために、前記燃料電池で進行する前記電気化学反応に供された後に前記燃料電池のカソード側から排出されるカソードオフガスを、前記燃料分解部に供給することを要旨とする。

【0072】このような本発明の第2の燃料電池装置において、前記酸素供給手段は、前記燃料分解部に対して酸素を供給するために、前記カソードオフガスと空気との両方を前記燃料分解部に供給することが可能であり、前記燃料分解部に供給する前記カソードオフガス量と空気量との割合を制御する酸化ガス制御手段を備えることとしてもよい。

【0073】上記カソードオフガスは、空気よりも酸素の含有量が少ない。したがって、このような構成とすれば、上記燃料分解部に対して所定量の酸素を供給する場合には、カソードオフガス量と空気量との割合を制御することによって、燃料分解部における滞留時間を制御することができ、滞留時間を制御することによる既述した効果を得ることができる。あるいは、上記燃料分解部に対してカソードオフガスと空気とから成る所定量のガス

を供給する場合に、カソードオフガス量と空気量との割合を制御することによって、燃料分解部に供給する酸素量を調節して反応速度を制御することができ、反応速度を制御することによる既述した効果を得ることができる。また、カソードオフガスは燃料分解部の内部温度よりも低温であるため、カソードオフガスを燃料分解部に供給すると、燃料分解部の内部温度が低下する。したがって、燃料分解部にカソードオフガスを供給する状態を制御することによって、燃料分解部の内部温度を制御することが可能となる。

【0074】本発明の第3の燃料電池装置は、電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、請求項3記載の燃料改質装置を備え、該燃料改質装置が生成した前記水素リッチガスを利用して、前記燃料電池において前記電気化学反応を進行すると共に、前記燃料改質装置は、前記燃料電池で進行する前記電気化学反応に供された後に前記燃料電池のアノード側から排出されるアノードオフガスを、前記燃料分解部に対して供給するアノードオフガス供給手段をさらに備えることを要旨とする。

【0075】燃料分解部では水素が存在することによって煤形成を抑えることができるため、水素を含有するアノードオフガスを燃料分解部に供給することによって、燃料分解部における煤形成を抑えることが可能となる。また、アノードオフガスを燃料分解部に供給すると、このアノードオフガスは上記水素リッチガスと共に燃料電池に供給されるため、電気化学反応に利用されずにアノードオフガス中に残留する水素を、再び電気化学反応に供給することが可能となる。

【0076】本発明の第3の燃料電池装置において、前記アノードオフガス供給手段は、前記燃料分解部に供給される前記第1の炭化水素系燃料の量に応じて、前記燃料分解部に供給する前記アノードオフガスの量を制御するアノードオフガス量制御手段を備えることとしてもよい。

【0077】アノードオフガスを燃料分解部に供給することによって、燃料分解部における滞留時間が短くなる。したがって、燃料分解部に供給するアノードオフガス量を制御することによって、燃料分解部における滞留時間を制御することができ、滞留時間を制御することによる既述した効果を得ることができる。また、アノードオフガスは燃料分解部の内部温度よりも低温であるため、アノードオフガスを燃料分解部に供給すると、燃料分解部の内部温度が低下する。したがって、燃料分解部にアノードオフガスを供給する状態を制御することによって、燃料分解部の内部温度を制御することが可能となる。

【0078】本発明の第4の燃料電池装置は、電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置であって、請求項2記載の燃料改質装置を備え、該燃料

改質装置が生成した前記水素リッチガスを利用して、前記燃料電池において前記電気化学反応を進行すると共に、前記燃料分解部は、前記燃料電池装置内における所定の部位から排出される所定の高温流体との間で熱交換を行なうことが可能となる熱交換部を備え、前記所定の高温流体との間で熱交換を行なうことで得られる熱を利用して、前記熱分解を行なうことを要旨とする。

【0079】以上のように構成された本発明の第4の燃料電池装置は、燃料分解部において、第1の炭化水素系燃料を熱分解して、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料を生成する。改質器は、改質反応を促進する改質触媒を備え、前記燃料分解部から前記第2の炭化水素系燃料の供給を受け、前記改質反応により該第2の炭化水素系燃料から水素リッチガスを生成する。燃料電池は、生成した水素リッチガスを利用して電気化学反応を進行して起電力を得る。このとき、燃料分解部は、前記燃料電池装置内における所定の部位から排出される所定の高温流体との間で熱交換を行なうことが可能となる熱交換部を備え、前記所定の高温流体との間で熱交換を行なうことで得られる熱を利用して、前記熱分解を行なう。

【0080】このような構成とすれば、第1の炭化水素系燃料を熱分解するために要する熱は、熱交換部を介して供給されるため、熱分解に要する熱を得るために、熱分解が進行する燃料分解部内で発熱反応を行なう必要がなく、上記水素リッチガス中の水素濃度が低下してしまうおそれがない。

【0081】本発明の第4の燃料電池装置において、前記燃料分解部において分解されるのと同種の前記第1の炭化水素系燃料を完全酸化する完全酸化部をさらに備え、前記高温流体は、前記完全酸化部において前記第1の炭化水素系燃料を完全酸化させて得られる完全酸化ガスであることとしても良い。

【0082】また、本発明の第4の燃料電池装置において、前記高温流体は、前記燃料電池のアノード側から排出されるアノードオフガスに酸素を供給することによって、前記アノードオフガス中の水素を燃焼させて得られるオフガス燃焼ガスであることとしても良い。

【0083】このような構成とすれば、燃料電池における電気化学反応で消費されずに残った水素を燃焼させることで、上記熱分解に要する熱を供給することができ、燃料電池装置におけるエネルギー効率を高めることが可能となる。

【0084】また、本発明の第4の燃料電池装置において、燃焼反応によって熱を発生し、該発生した熱によって、前記第1の炭化水素系燃料を前記燃料分解部に供給するのに先立って加熱する加熱部をさらに備え、前記高温流体は、前記加熱部における前記燃焼反応によって生成される燃焼排ガスであることとしても良い。

【0085】本発明の第5の燃料電池装置は、電気化学反応により起電力を得る燃料電池を備える燃料電池装置

であって、第1の炭化水素系燃料を分解して、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料を生成する燃料分解部を備え、前記燃料電池は、前記燃料分解部から前記第2の炭化水素系燃料を供給されて、該第2の炭化水素系燃料を利用して電気化学反応を進行することを要旨とする。

【0086】以上のように構成された本発明の第5の燃料電池装置は、第1の炭化水素系燃料を分解して、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料を生成し、燃料電池において、第2の炭化水素系燃料を利用して電気化学反応を進行して、起電力を得る。

【0087】このような本発明の第5の燃料電池装置によれば、燃料電池に供給するのに先立って、より炭素数が小さくなるよう炭化水素系燃料を分解するため、燃料電池内で煤が生成されることに起因して不都合が生じるのを防止することができる。ここで、本発明の第5の燃料電池装置が備える燃料電池は、炭化水素系燃料が直接内部に供給される燃料電池であるが、内部にさらに改質触媒を備え、供給された炭化水素系燃料を改質して得られる水素を電気化学反応に供する構成であっても良いし、供給された炭化水素系燃料を直接電気化学反応に供する構成であっても良い。

【0088】本発明の第5の燃料電池装置において、前記燃料電池は、高温型燃料電池であり、前記燃料分解部は、熱分解によって前記第1の炭化水素系燃料を分解すると共に、前記燃料電池で発生する熱を利用して前記熱分解を進行することとしても良い。

【0089】ここで、前記燃料電池は、電解質を移動するイオン種が酸化物イオンであることとしても良い。

【0090】また、本発明の第5の燃料電池装置において、前記第1の炭化水素系燃料は、炭素数が値4以上の高級炭化水素系燃料であることとしても良い。

【0091】本発明の燃料電池装置の始動方法は、前記燃料電池装置は、第1の炭化水素系燃料と酸素の供給を受け、該酸素を用いて前記第1の炭化水素の一部を燃焼させると共に、該燃焼によって生じた熱を利用して、前記第1の炭化水素系燃料の残りを熱分解し、より炭素数の小さい第2の炭化水素系燃料を生成する燃料分解部と、前記燃料分解部から前記第2の炭化水素系燃料を供給されて、該第2の炭化水素系燃料を利用して電気化学反応を進行する燃料電池とを備え、前記燃料電池が所定の温度に昇温するまでは、前記燃料分解部に供給する前記第1の炭化水素系燃料に対する前記酸素の割合を多くすることによって、前記燃料分解部内で前記第1の炭化水素系燃料の部分酸化反応を十分に進行させると共に、前記燃料電池内のアノード側触媒上で、前記部分酸化反応で生じた水素および一酸化炭素の燃焼反応を進行させることを要旨とする。

【0092】以上のように構成された本発明の燃料電池装置の始動方法によれば、第1の炭化水素系燃料を部分

分解して成る水素および一酸化炭素は、酸化される活性が強く、燃料電池内で活発に燃焼反応を起こすことができるため、燃料電池装置の始動時に、暖機に要する時間を短縮することができる。

【0093】

【発明の実施の形態】以上説明した本発明の構成・作用を一層明らかにするために、以下本発明の実施の形態を、実施例に基づいて以下の順序で説明する。

1. 第1実施例の燃料電池装置10の全体構成
2. クラッキング部20で進行する反応について
3. 負荷変動時のクラッキング部における反応の制御について
4. 燃料電池装置10の変形例
5. クラッキング部20の間接的な加熱
6. 気相反応抑制型改質器
7. 燃料直接供給型燃料電池

【0094】(1)第1実施例の燃料電池装置10の全体構成：図1は、本発明の好適な一実施例である燃料電池装置10の構成の概略を表わすブロック図である。燃料電池装置10は、ガソリンを貯蔵するガソリントank 30、水を貯蔵する水タンク32、ガソリン中の硫黄分を除去する脱硫器33、加熱部50を備える蒸発器34、ガソリンを熱分解するクラッキング部20、改質反応により水素リッチガスを生成する改質器36、水素リッチガス中の一酸化炭素(CO)濃度をシフト反応により低減するシフト部37、水素リッチガス中の一酸化炭素濃度を酸化反応により低減するCO選択酸化部38、電気化学反応により起電力を得る燃料電池40、空気を圧縮して燃料電池40に供給するブロワ42、コンピュータにより構成される制御部60を主な構成要素とする。本実施例の燃料電池装置10は、改質器36に先立って、ガソリンを熱分解するクラッキング部20を設けたことに特徴があるが、まず、図1に基づいて燃料電池装置10の全体構成について説明する。

【0095】ガソリントank 30に貯蔵されるガソリンは、脱硫器33および加熱部50に供給される。ガソリントank 30と脱硫器33とを接続する燃料流路70にはポンプ57が設けられており、上記燃料流路70から分岐して加熱部50に通じる分岐路71にはポンプ56が設けられている。ポンプ56、57は、制御部60に接続されており、制御部60から出力される信号によって駆動され、脱硫器33および加熱部50に供給されるガソリン量を制御する。

【0096】脱硫器33は、供給されたガソリン中に含まれる硫黄分を、吸着によって除去する。硫黄分は、改質器36が備える改質触媒の活性を低下させて改質反応を阻害してしまうため、燃料電池装置10においては、改質器36に先だって脱硫器33を設けて硫黄分の除去を行なう。脱硫器33で硫黄分が除去されたガソリンは、燃料流路73を介して蒸発器34に供給される。

【0097】また、燃料流路73には、水タンク32から供給される水が通過する流路である水流路72が接続している。水流路72を通過する水は、この接続部において、燃料流路73を通過するガソリンに混合されて、ガソリンと共に蒸発器34に供給される。水流路72にはポンプ58が設けられている。このポンプ58は、制御部60に接続されており、制御部60から出力される信号によって駆動され、水流路72を介して蒸発器34に供給する水量を調節する。

【0098】蒸発器34は、硫黄分が除去されたガソリンと水タンク32から供給される水とを気化させる装置であり、上記したようにガソリンと水の供給を受けて、水蒸気とガソリンガスからなる気体（以下、混合気体と呼ぶ）と成し、これを所定の温度に昇温して排出する。蒸発器34から排出された上記混合気体は、燃料ガス流路74を介してクラッキング部20に供給される。蒸発器34には、水およびガソリンを気化させるための熱源として加熱部50が併設されている。加熱部50は、ガソリンタンク30から供給されるガソリンや、後述する燃料電池から排出されるアノードオフガスの供給を受ける。また、加熱部50は、ブロワ52から圧縮空気の供給を受ける。加熱部50は、その内部に燃焼触媒を備えており、上記ガソリンやアノードオフガス、および空気をを用いて燃焼反応を行ない、所望の熱を発生して、発生した熱を伝熱によって蒸発器34に供給する。加熱部50に供給される上記ガソリンやアノードオフガスの量を制御することによって加熱部50で生じる熱量が調節されており、これによって、蒸発器34では、クラッキング部20における反応温度に応じた温度にまで上記混合気体が昇温される。

【0099】クラッキング部20は、上記混合気体を供給されると、この混合気体中のガソリンの一部を燃焼させて熱を発生すると共に、燃焼反応で生じた熱を利用して残りのガソリンを熱分解する。ここで、クラッキング部20には、上記燃焼反応で要する酸素（空気）をクラッキング部20内に供給するためのブロワ55が併設されている。ブロワ55から供給される空気は、燃料ガス流路74を通過する上記混合気体に混合されて、クラッキング部20における反応に供される。ブロワ55は、制御部60に接続されており、制御部60から出力される信号によって駆動され、クラッキング部20に供給する空気量を調節する。なお、図1では、ブロワ55から供給される空気が通過する流路は、燃料ガス流路74に接続することとしたが、クラッキング部20に直接接続することとしてもよく、ブロワ55から供給される空気が、上記混合気体と十分に混じり合った状態でクラッキング部20内を通過可能となればよい。クラッキング部20でガソリンが熱分解されることで、上記混合気体は、ガソリンに比べてより炭素数の小さな炭化水素と、水蒸気とを含有する気体（以下、改質燃料気体と呼ぶ）

となって、燃料ガス流路75を介して改質器36に供給される。クラッキング部20の構成については、さらに詳しく後述する。

【0100】改質器36は、内部に改質触媒を備えており、供給された上記改質燃料気体を改質して、水素リッチな燃料ガスを生成する。改質触媒としては、白金、パラジウム、ロジウムなどの貴金属、あるいはこれらの合金を用いることができる。なお、本実施例の改質器36では、水素リッチガスを生成する際に、水蒸気改質反応に加えて、水素の生成を伴う部分酸化反応も同時に進行する。部分酸化反応は、発熱反応であるため、水蒸気改質反応が進行する際には、上記改質燃料気体がクラッキング部20側から持ち込んだ熱に加えて、部分酸化反応で生じた熱も利用される。この部分酸化反応に必要な酸素を供給するために、改質器36には外部の空気を改質器36内に供給するブロワ53が併設されている。ブロワ53は、制御部60に接続しており、制御部60によってその駆動状態が制御される。

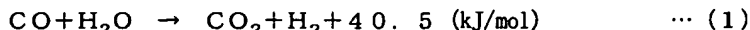
【0101】上記したように、本実施例の燃料電池装置10では、改質器36に空気を供給し、酸化反応で生じる熱によって水蒸気改質反応で要する熱を賄うこととしたが、改質器36では酸化反応を行わず、水蒸気改質反応のみによって水素を生成することとしても良い。あるいは、水素を生成する効率が高い水蒸気改質反応を、部分酸化反応に比べてより多く進行させることとしても良い。このような構成とする場合には、水蒸気改質反応で要する熱を供給するために、改質器36にヒータなどの加熱装置を設ければよい。

【0102】改質器36で生成された水素リッチな燃料ガスは、ガス流路76を介してシフト部37に供給される。シフト部37は、供給された水素リッチガス中の一酸化炭素濃度を低減する装置である。改質器36において上記改質燃料気体から改質反応によって生成される水素リッチガスは、所定量（10%程度）の一酸化炭素を含んでいるが、シフト部37では、この水素リッチガス中の一酸化炭素濃度が低減される。

【0103】シフト部37は、一酸化炭素と水とを反応させて水素と二酸化炭素とを生じるシフト反応を進行させることによって、水素リッチガス中の一酸化炭素濃度を低減する装置であり、シフト反応を促進する触媒を備えている。このようなシフト反応を促進する触媒（触媒金属）としては、銅系触媒などの低温触媒や、鉄系触媒などの高温触媒等が知られている。シフト部37は、いずれのシフト触媒を備えることとしてもよく、これら低温触媒と高温触媒とを組み合わせることによって、より充分に一酸化炭素濃度を低減する構成としても良い。シフト部37が備えるシフト触媒の種類は、改質器から排出される水素リッチガス中の一酸化炭素濃度や、燃料電池40が要求する燃料ガス中の一酸化炭素濃度の限界などに応じて、適宜選択すればよい。本実施例のシフト部

37は、Cu-Zn触媒を備えることとした。以下に、

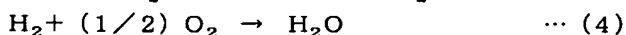
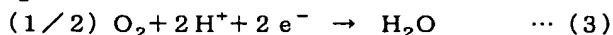
(1) 式として、上記シフト触媒によって促進させるシ



【0105】なお、図1では記載を省略したが、改質器36とシフト部37との間には、熱交換器を設けることとしても良い。改質器36は、通常はその内部温度が600℃以上となるように制御されてガソリンの改質反応を進行するが、シフト部37で進行するシフト反応は、既述した触媒のもとでは200℃～400℃の温度範囲において良好に進行する。したがって、改質器36とシフト部37との間に熱交換器を設け、改質器36から排出された水素リッチガスの温度を十分に降温させた後にシフト部37に供給することで、非所望の高温のガスがシフト部37に供給されるのを防ぐことができる。また、シフト反応は、(1) 式に示したように発熱反応であるため、シフト部37の内部に冷却手段を設けて、シフト部37内の温度を望ましい温度範囲に調節する構成としてもよい。シフト部37で一酸化炭素濃度が低減された水素リッチガスは、流路77を介してCO選択酸化部38に供給される。

【0106】CO選択酸化部38は、シフト部37から供給された水素リッチガス中の一酸化炭素濃度を、さらに低減するための装置である。すなわち、シフト部37では、水素リッチガス中の一酸化炭素濃度は数%程度まで低減されるが、CO選択酸化部38では、一酸化炭素濃度を数ppm程度にまで低減する。CO選択酸化部38で進行する反応は、水素リッチガスに豊富に含まれる水素に優先して、一酸化炭素を酸化する一酸化炭素選択酸化反応である。CO選択酸化部38には、一酸化炭素の選択酸化触媒である白金触媒、ルテニウム触媒、パラジウム触媒、金触媒、あるいはこれらを第1元素とした合金触媒を担持した担体が充填されている。このような一酸化炭素選択酸化触媒のもとでは、反応温度を100℃～200℃に保つことで、一酸化炭素選択酸化反応は良好に進行する。

【0107】なお、CO選択酸化部38で進行する一酸化炭素選択酸化反応で要する酸素を供給するために、CO選択酸化部38には、ブロウ54が併設されている。ブロウ54は、外部から空気を取り込んでこれを圧縮し、CO選択酸化部38に供給する。ブロウ54は制御部60に接続しており、CO選択酸化部38に供給される空気(酸素)量は、制御部60によって調節される。なお、CO選択酸化部38で進行する一酸化炭素選択酸化反応は発熱反応である。したがって、CO選択酸化部



【0111】制御部60は、マイクロコンピュータを中心とした論理回路として構成され、詳しくは、予め設定された制御プログラムに従って所定の演算などを実行す

フト反応を表す式を示す。

【0104】

38は、内部温度(触媒温度)を上記した望ましい反応温度に保つために、内部に冷却手段を備えている。

【0108】CO選択酸化部38で上記のように一酸化炭素濃度が下げられた水素リッチガスは、燃料ガス流路78によって燃料電池40に導かれ、燃料ガスとしてアノード側における電池反応に供される。燃料電池40で電池反応に供された後のアノードオフガスは、既述したようにアノードオフガス流路79に排出されて加熱部50に導かれ、このアノードオフガス中に残っている水素が燃焼のための燃料として消費される。一方、燃料電池40のカソード側における電池反応に関わる酸化ガスは、制御部60から駆動信号を出力されるブロウ42によって、酸化ガス流路43を介して圧縮空気として供給される。電池反応に用いられた残りのカソードオフガスは、外部に排出される。

【0109】燃料電池40は、固体高分子電解質型の燃料電池であり、電解質膜、アノード、カソード、およびセパレータとを備える単セルを複数積層して構成されている。電解質膜は、例えばフッ素系樹脂などの固体高分子材料で形成されたプロトン伝導性のイオン交換膜である。アノードおよびカソードは、共に炭素繊維を織成したカーボクロスにより形成されている。また、電解質膜と、アノードあるいはカソードとの間には、電気化学反応を促進する触媒を備える触媒層が設けられている。このような触媒としては、白金、あるいは白金と他の金属から成る合金が用いられる。セパレータは、カーボンを圧縮してガス不透過とした緻密質カーボンや、耐食性に優れた金属など、ガス不透過性を有する導電性部材により形成されている。また、このセパレータは、上記アノードおよびカソードとの間に、燃料ガスおよび酸化ガスの流路を形成する。燃料電池40は、燃料ガスとしての水素リッチガスと酸化ガスとしての圧縮空気とを上記流路に供給されて、電気化学反応を進行することで起電力を発生する。燃料電池40が発生した電力は、燃料電池40に接続される所定の負荷に供給される。以下に、燃料電池40で進行する電気化学反応を示す。(2) 式はアノード側における反応、(3) 式はカソード側における反応を示し、電池全体では(4) 式に示す反応が進行する。

【0110】

るCPU64と、CPU64で各種演算処理を実行するのに必要な制御プログラムや制御データ等が予め格納されたROM66と、同じくCPU64で各種演算処理を

するのに必要な各種データが一時的に読み書きされるRAM68と、燃料電池装置10が備える各種センサからの検出信号や、燃料電池に接続された負荷に関わる情報などを入力すると共に、CPU64での演算結果に応じて既述した各ブロワやポンプなどに駆動信号を出力する入出力ポート62等を備える。制御部60は、このように各種の信号を入出力することによって、燃料電池装置10全体の運転状態を制御する。

【0112】(2)クラッキング部20で進行する反応について：以下に、クラッキング部20で進行する反応についてさらに詳しく説明する。クラッキング部20は、既述したように、混合気体中のガソリンの一部を燃焼させて熱を発生すると共に、燃焼反応で生じた熱を利用して残りのガソリンを熱分解する装置である。クラッキング部20に供給するガソリンの量は、燃料電池40に接続される負荷の大きさ(負荷の大きさそのものだけでなく、負荷の大きさに関して外部から入力される指令値を含む。以下、同じ)に基づいて決定されるものであり、クラッキング部20でガソリンの燃焼反応および分解反応が良好に進行し、改質器36において改質反応が良好に進行したときに、最終的に所望量の水素を燃料電池40に供給可能となる量である。このような、クラッキング部20に供給すべきガソリン量として決定される量は、例えば上記負荷の大きさとして取りうるすべての値に対応して予め設定され、マップとして制御部60内に記憶されている。供給ガソリン量の制御を行なう際には、負荷の大きさに関わる情報が制御部60に入力され、制御部60は、この情報に基づいて上記マップを参照することによって供給ガソリン量に関する情報を得て、既述したポンプ57などを制御し、供給ガソリン量を調節する。

【0113】なお、クラッキング部20で進行する燃焼反応では、ガソリンを構成する炭化水素が脱水素されて水素が生成されると共に、炭化水素が脱水素されて成る分子中の炭素原子が酸化されて一酸化炭素や二酸化炭素を生じ、また、部分的に脱水素された炭化水素の炭素間の結合が切断されて、より炭素数の小さな炭化水素を生じる。すなわち、クラッキング部20で進行する燃焼反応の主反応は、一種の部分酸化反応であるということができる。また、上記燃焼反応によって生じる一酸化炭素は、クラッキング部20、改質器36、シフト部37のいずれかにおいて水蒸気と反応することによって、既述した(1)式に示したシフト反応を進行して最終的に水素を生じることができる。さらに、上記燃焼反応によって生じる炭素数の小さな炭化水素は、改質器36において改質反応に供されて水素を生成する。したがって、燃料電池40における電気化学反応には、改質器36およびシフト部37で生成される水素の他に、クラッキング部20で生成される水素も供されることになり、クラッキング部20に供給されるガソリン量は、最終的に燃料

電池40に供給される水素量が所望の量になるように制御される。

【0114】(2-1)クラッキング部20における煤形成：クラッキング部20は、上記したようにガソリンの燃焼反応やガソリンの分解反応を進行する部材であるが、燃焼反応や分解反応が進行する際の条件によっては、上記反応に伴って煤が形成されてしまうおそれがある。クラッキング部20内を通過する気体中で煤が生成されると、この煤を含有する気体はそのまま下流側に供給されて、改質器36やシフト部37やCO選択酸化部38において、それぞれが備える触媒上に付着し、触媒上で進行する反応を阻害してしまうという不都合を生じる。さらに、クラッキング部20で煤が生じるときには、燃料電池装置10全体で、燃料電池40に供給する水素を生成する際の効率が低下するという不都合が生じる。ここで、クラッキング部20で燃焼反応が充分に進行して煤の形成が充分に少ないときには、上記したように、ガソリンを構成する炭化水素が脱水素されて成る分子中の炭素原子が酸化されて一酸化炭素が生成し、この一酸化炭素が(1)式の反応に供されることによって水素を生成する。また、ガソリンを構成する炭化水素が部分的に脱水素された分子が分解されて、より炭素数の小さな炭化水素となったものが改質器36に供されて、改質反応によって水素を生成する。しかしながら、クラッキング部20で煤が形成されるときには、ガソリンを構成する炭化水素が含有する炭素のうち、煤を形成した炭素については、上記のように水素の生成に関与することができず、煤の形成量に応じて水素の生成量が減少することになり、ガソリンから水素を生成する効率が低下するものと考えられる。

【0115】クラッキング部20において煤形成に関わる条件としては、内部温度、供給酸素量、滞留時間などを上げることができる。クラッキング部20においては、その内部温度が所定の温度(1300K)を越えると、煤を形成する反応が活発化してしまうという性質を示す。また、クラッキング部20内部で酸素量が不足する場合にも、煤を形成する反応が活発化する。また、クラッキング部20においては、ここに供給される混合気体が長くクラッキング部20に留まるほど、煤形成に至る反応が進行するため、煤形成を抑えるためには滞留時間の制御も有効である。なお、これらの条件は互いに独立したものではなく、例えば供給酸素量が過剰となると内部温度が上昇するなど、煤形成を抑える制御を行なう上で相互に関連しており、さらに供給する水蒸気量などもこれらの条件に影響を与える。以下、煤形成と、クラッキング部20における反応条件との関係について、さらに詳しく説明する。

【0116】(2-1-1)供給酸素量と煤形成：上記したように、クラッキング部20内で酸素が不足すると、クラッキング部20内(クラッキング部20内を通

過するガスの気相中では非所望の程度に煤が生成されるおそれがある。これは、クラッキング部20内では、ガソリンが分解される過程で、酸素が存在することによって、部分酸化反応による種々の中間生成物が生じると共に、煤形成に至る反応経路を構成する反応が抑えられた状態となるが、酸素が不足することでガソリンの酸化反応の進行が抑制され、ガソリンを構成する炭化水素の分解過程で生じた低級炭化水素（主に炭素数が値4以下のオレフィン）ラジカル結合反応による分子成長反応が進行し、煤を生成する反応が加速されてしまうためである。

【0117】一方、クラッキング部20に供給する酸素量が過剰となった場合にも、煤形成による上記した不都合が引き起こされる。すなわち、クラッキング部20に供給される酸素量が多いときには、クラッキング部20において燃焼反応が活発に進行することによりクラッキング部20内の温度上昇が引き起こされ、これによってさらに燃焼反応が活発化する（反応速度が上昇する）。このようにして非所望の程度にまで燃焼反応が活発化すると、燃焼反応によって非所望の速さで酸素が消費されてしまい、クラッキング部20内で最終的に酸素不足の状態となり、さらに燃焼反応の活発化による高温場の形成により、煤が形成されることになる。

【0118】したがって、このような煤形成による不都合を防止するために、クラッキング部20内で適度な燃焼反応および分解反応が進行するように、クラッキング部20に供給する酸素量（空気量）が制御される。クラッキング部20に供給する酸素量は、クラッキング部20に供給される所定量のガスにおいて、ガス中のガソリン量に対するガス中の酸素量として制御することができ、例えば、「供給されるガス中のガソリンに含まれる炭素原子のモル数」に対する「供給されるガス中の酸素原子のモル数」の割合であるO/C値を設定することによって制御される。

【0119】上記したようにクラッキング部20に供給する酸素量が過剰である場合には、クラッキング部20内の温度が非所望の程度に上昇するおそれがあるが、このようなクラッキング部20内部温度の過度の上昇は、上記したように燃焼反応を活発化して酸素不足を引き起こす以外の作用によっても、煤形成を引き起こす要因となる。すなわち、クラッキング部20の内部では、ガソリンの分解や酸化に伴って種々の反応が進行するが、クラッキング部20の内部温度が所定の値を超えると、上記種々の反応の内、煤形成に至る反応経路を構成する反応が活発化する。したがって、クラッキング部20内の煤形成が十分に抑えられるように、クラッキング部20に供給する酸素量と共に、クラッキング部20の内部温度が定められる。クラッキング部20の内部温度としては、1300Kを越えると特に煤の形成が著しくなるため、本実施例では、この温度を超えない範囲で、所望

の反応の活性は充分に高くなるように、クラッキング部20の内部温度を制御している。

【0120】なお、クラッキング部20で燃焼に用いられなかった酸素は、既述した改質燃料気体に含まれる状態で改質器36に供給され、改質器36において部分酸化反応に利用される。図2は、燃料電池装置10を構成する各部に対して種々の流体が供給される様子を模式的に表わす説明図であり、図1に示した燃料電池装置10の構成は、図2（A）に対応する。すなわち、図1に示した燃料電池装置10では、改質器36に空気を供給するブロワ53を改質器36に併設しており、クラッキング部20側から供給される酸素量では改質器36で所望の程度に部分酸化反応を進行させるために不足する場合に、必要量の酸素を改質器36に補うことが可能となっている。これに対して、改質器36で進行する部分酸化反応で要する酸素を、上記混合気体と共に予めクラッキング部20にすべて供給する構成とすることも可能である（図2（B）参照）。クラッキング部20に供給する酸素量は、クラッキング部20で進行する燃焼反応および分解反応の活性（反応速度）や、クラッキング部20における煤形成などに影響するため、燃料電池装置10全体の効率を考慮して、各部に供給する空気量を適宜制御すればよい。

【0121】（2-1-2）供給水蒸気量と煤形成：水蒸気は、クラッキング部20内で進行するガソリンの燃焼反応速度を抑制し、急激な温度上昇を抑えることができ、ガソリンを構成する炭化水素の分解反応を進行させ煤形成を抑制することができる。したがって、図1に示した燃料電池装置10では、改質器36で進行する水蒸気改質反応で要する水蒸気と、シフト部37で進行するシフト反応で要する水蒸気とを、ガソリンと共に蒸発器34を介してクラッキング部20に供給することとした（図2（A）参照）。もとより、クラッキング部20内の煤形成が許容範囲であれば、クラッキング部20に供給する水蒸気量を削減する、あるいは、クラッキング部20には水蒸気を供給しないこととしてもよい。この場合には、蒸発器34と同様の蒸発器を蒸発器34とは別に設けて、水タンク32内に貯蔵された水をこの蒸発器によって気化して、改質器36および／またはシフト部37に直接供給することとすればよい（図2（C）参照）。

【0122】さらに、クラッキング部20では、水蒸気が存在することによって、内部温度の上昇が抑制されて煤の形成が抑えられることに加えて、クラッキング部20内の滞留時間が短くなることによって煤の形成が抑えられる。クラッキング部20に水蒸気を供給することによるこのような影響を考慮して、クラッキング部20内で生じる煤量が許容範囲となるように、クラッキング部20に供給する水蒸気量を制御すればよい。クラッキング部20に供給する水蒸気量は、クラッキング部20に

供給される所定量の H_2 において、ガス中のガソリン量に対するガス中の供給水蒸気量として制御することができる。例えば、「供給されるガス中のガソリンに含まれる炭素原子のモル数」に対する「供給されるガス中の水分子のモル数」の割合であるS/C値を設定することによって制御される。

【0123】また、クラッキング部20に水蒸気を供給する場合に、そのすべての量を、クラッキング部20の入り口部から供給する必要はなく、後述するように、クラッキング部20内で、ガスの流れ方向に沿って複数箇所から分割して供給することとしても良い。このように水蒸気を分割してクラッキング部20に供給する場合には、クラッキング部20の入り口部付近で進行するガソリンの熱分解反応の効率を向上させることができる。すなわち、熱分解反応は所定の高温にならないと進行しないため、クラッキング部20の入り口部から供給する水蒸気は予め充分に昇温させる必要があるが、水蒸気を分割して供給する場合には、水蒸気をクラッキング部20に供給するのに先立って昇温させるのに要する熱の一部が不要となり、この熱を、クラッキング部20の入り口部付近でガソリンを熱分解するために用いることが可能となる。あるいは、水蒸気をクラッキング部20に供給するのに先立って昇温させるのに要する熱の一部を削減して、装置全体のエネルギー効率を向上させることが可能となる。これに対して、クラッキング部20の入り口部付近で活発に進行する酸化反応によって、クラッキング部20の入り口部付近が非所望の程度にまで昇温し、煤形成が活発化する場合がある場合には、クラッキング部20に供給する水蒸気量の内、入り口部から供給する水蒸気の割合を増やして、過度の発熱を抑える制御を行うことも可能である。

【0124】なお、上記したように、改質器36やシフト部37などクラッキング部20よりも下流側の部材で要する酸素や水蒸気は、クラッキング部20の上流側から供給することとしても、各部材に直接供給することとしても良いが、改質器36およびシフト部37のそれぞれに対して別個に所望量の酸素や水蒸気を供給可能な構成とすることは、クラッキング部20と改質器36とシフト部37とのそれぞれにおいて最適条件で反応が進行するように、供給酸素量や供給水蒸気量を制御することが可能となり望ましい。

【0125】(2-2)クラッキング部20を設けることによる効果：以上のように構成された本実施例の燃料電池装置10によれば、改質器36に先立ってクラッキング部20を設け、ガソリンを熱分解して炭素数がより小さい炭化水素としたものを改質反応に供している。したがって、改質器36内で改質反応が進行する際に煤が生成されるのを抑えることができ、形成された煤が改質触媒の表面を覆って改質反応の活性を低下させるのを防止することができる。そのため、煤によって改質反応の

活性が低下することに起因して、燃料電池装置10全体の性能が低下してしまうのを防止することができる。

【0126】ここで、改質器36内における煤形成について説明する。改質反応の際には、ガソリンなどの炭化水素系の燃料から水素が取れる反応(脱水素反応)と、脱水素された炭素鎖がさらに細かく分解されると共に酸素と結合して一酸化炭素やさらに二酸化炭素を生じる反応とが進行すると考えられる。ここで、ガソリンのように炭素数が大きい(炭素鎖が長い)炭化水素系の燃料を改質反応の燃料として用いると、改質器内で煤が形成され易いが、これは、炭素数の大きな炭化水素系燃料の場合には、触媒表面上に酸素原子に比べ炭素原子の割合が大幅に増加する領域が存在し、このような領域では酸素との反応が充分に進み難く、炭素原子同士の結合反応が進行して、煤が生成し易くなると考えられる。

【0127】したがって、本実施例において改質器36での煤の形成が抑えられる効果が得られるのは、改質反応に先立って、ガソリンを、より炭素数が小さくなるよう分解しているため、改質反応の際に、触媒表面上の炭素原子の存在割合が増加する領域がより少なくなり、炭素原子同士の結合反応が抑制されて、酸素原子と結合する反応がより容易に進行するようになるためと考えられる。また、本実施例によれば、予め炭化水素系燃料が分解されていることによって、改質反応の際に炭素鎖を分解する反応がより少なくて済み、改質器で進行する改質反応全体の効率が向上する。したがって、改質反応が充分に進行せずに改質されないままの燃料が改質器36から排出されてしまうのを防止することができると共に、より少ない改質触媒で充分に改質反応を進行させたり、より低い温度で充分に改質反応を進行させることが可能となる。そのため、改質器をより小型化したり、改質器における改質反応の温度をより低く設定することが可能となる。改質器を小型化可能であることにより、燃料電池装置全体をより小型化することが可能になる。このような装置の小型化は、燃料電池装置を、車両などの移動体の駆動用電源として用いる場合には特に有利である。

【0128】また、改質器36に先立ってクラッキング部20を設けることにより、改質器36において改質燃料が改質触媒表面に吸着して触媒被毒を起こすのを抑えることができるという効果を得ることができる。炭化水素系燃料は、炭素鎖が長いほど改質触媒表面に吸着し易いという性質を有している。したがって、本実施例のように、改質器36に供給するのに先立ってガソリンを熱分解し、より炭素数の小さな炭化水素を改質燃料として改質器36に供給することで、改質燃料が改質触媒表面に吸着することに起因して改質反応の活性が低下してしまうのを防止することができる。

【0129】改質反応に先立ってガソリンを分解することによる上記した効果は、改質器36で進行する改質反応の種類や改質器36が備える改質触媒の種類によら

ず、同様に得ることができる。上記実施例では、改質器36では、水蒸気改質反応と共に部分酸化反応を進行することとしたが、主として水蒸気改質反応のみを進行させて水素を生成する場合、あるいは主として部分酸化反応のみを進行させて水素を生成する場合にも、炭素数の大きな炭化水素系燃料を予め分解した上で改質反応に供することによる同様の効果を得ることができる。

【0130】(2-3)クラッキング部20の変形例：
(2-3-1)触媒の利用：既述したガソリンの燃焼(酸化)反応および分解反応は、クラッキング部20として設けた所定の反応器を、その内部温度が所定の高温(例えば800～1000℃程度)となるように制御しつつ、この反応器に気化したガソリンおよび酸素を供給すれば、上記反応器の内部において進行する反応であるが、クラッキング部20で進行する上記反応の効率をより向上させるために、上記反応を促進する活性を有する触媒を、クラッキング部20内に備えさせることとしても良い。このような触媒を備えさせて、クラッキング部20で進行する上記反応の効率を向上させることにより、クラッキング部20をより小型化することが可能となる。クラッキング部20に備えさせる触媒としては、ガソリンなどの炭化水素系燃料の燃焼反応を促進する活性と、ガソリンなどの炭化水素系燃料の分解反応を促進する活性とのうち、少なくとも一方の活性を備える触媒であれば、クラッキング部20内で進行する反応全体の効率を向上させる効果を得ることができる。クラッキング部20に備えさせるこのような触媒としては、例えば、貴金属系触媒や、ニッケル触媒、コバルト触媒、ペロブスカイト触媒、ヘキサアルミネート触媒などを挙げることができる。上記貴金属系触媒を用いる場合には、触媒担体としては、アルミナ、セリア、ジルコニア、チタニアなど、種々のものを適用することが可能である。

【0131】なお、上記触媒として、上記燃焼反応を促進する活性を有する触媒を用いる場合には、この触媒は、クラッキング部20において少なくともその入り口部に配設することが望ましい。このような構成とすれば、クラッキング部20の入り口部で燃焼反応を促進して内部温度を昇温させることによって、直ちに十分な活性で分解反応を開始することが可能となると共に、引き続き十分な活性で燃焼反応を進行させることが可能となる。

【0132】(2-3-2)低温プラズマの利用：上記分解反応を、より低温で促進させるために、低温プラズマを発生するプラズマ発生部をクラッキング部20に設けることとしても良い。このようなプラズマ発生部を設けて、クラッキング部20で進行する上記反応の効率を低温で向上させることにより、クラッキング部20をより小型化することが可能となる。また、上記反応を、プラズマを用いずに気相や触媒上で行なわせる場合よりも低温で行なうことができるため、クラッキング部20で

の煤形成は大幅に抑えることができる。クラッキング部20に備えさせるプラズマ発生部としては、供給ガスが流れる流路全体にプラズマが形成できるように、電極間に誘電体を挟んだ構成をとる放電形態(例えば、コロナ放電、沿面放電、オゾナイザ放電)であれば、クラッキング部20内で進行する反応全体の効率を向上させる効果を得ることができる。

【0133】クラッキング部20でガソリンを分解する程度(炭化水素の炭素数がどのくらいになるまで分解するかという程度)は、クラッキング部20における滞留時間(クラッキング部20の容積やガス流量による)および反応速度(反応温度等による)、あるいはクラッキング部20に備えさせる触媒やプラズマ発生部をどのように設定するかなどによって定まる。クラッキング部20の反応温度や供給酸素量を調節し、クラッキング部20における反応を活発化することによって、より炭素数が小さい炭化水素とすることができ、改質器36に供給する炭化水素の炭素数が小さいほど、改質部において煤の形成を抑え、改質反応の効率を上げる効果を得ることができる。しかしながら、クラッキング部20における反応の活発化は、既述したように、クラッキング部20における煤の生成を引き起こしたり、装置全体で改質反応の効率を低下させたりするおそれがある。したがって、ガソリンを分解することによって得られる効果と、クラッキング部20での反応を活発化することで生じる不都合とを考慮して、どの程度にまでガソリンが分解されるかに関わるクラッキング部における条件を設定すればよく、本実施例では、炭素数が値4以下の炭化水素になる程度にまでガソリンが分解されるように、クラッキング部20の動作条件を設定することとした。

【0134】(2-3-3)温度分布平均化手段の利用：クラッキング部20において、内部の温度分布状態を平均化する温度分布平均化手段を設ける構成も好適である。クラッキング部20の上流側からガソリンおよび空気を供給すると、ガソリンの分解反応に比べて燃焼反応の方が反応速度が高いため、ガソリンの燃焼反応はクラッキング部20の入り口部付近で活発に進行し、この入り口部付近に温度のピークが形成される。入り口部付近で活発に進行する燃焼反応によって生成した熱は、クラッキング部20内を通過するガス流によって、より下流側に運ばれ、ガソリンの分解反応に利用される。ここで、燃焼反応で生じた熱を伝熱によって下流側に伝える温度分布平均化手段をクラッキング部20に設けることとすれば、入り口部付近で生じた熱を、単にガス流によって運ばれる場合に比べてより速く下流側に伝えることができる。したがって、下流側の温度を上昇させてガソリンを分解する反応の活性を上昇させ、クラッキング部20で進行する分解反応全体の効率を向上させることができる。分解反応の効率を向上させることで、クラッキング部20をより小型化することが可能となる。さら

に、入り口部付近で生じた熱をより速やかに下流側に伝えることによって、燃焼反応が活発に進行する入り口部付近が非所望の程度に昇温してしまうのを抑え、入り口部付近において過度の昇温に起因する煤形成を防止することができる。

【0135】クラッキング部20に設けるこのような温度分布平均化手段としては、例えば、クラッキング部20内部で、その入り口部付近から下流側の所定の部位にかけて、メッシュやハニカムなどの構造を設ける構成を挙げることができる。このような構成とすれば、入り口部付近で進行する燃焼反応で生じた熱は、上記メッシュやハニカムなどの壁面によって下流側に伝えられ、上記した効果を得ることができる。なお、温度分布平均化手段は、メッシュやハニカム以外の構造としても良く、十分な表面積を有する構造の壁面（固相）を熱が伝わる構成とすることで、気相中よりも速く熱が伝えられることによる効果を得ることができる。

【0136】また、クラッキング部20において上記メッシュやハニカムなどの構造を設けることとすれば、上記伝熱の効果に加えて、クラッキング部20に供給されるガスの混合性を向上させるという効果を得ることができる。すなわち、クラッキング部20に供給されたガスは、クラッキング部20の上流側に設けられたメッシュやハニカムなどの端面領域に衝突することで拡散し、ガス成分の均一性をより十分に確保することができる。特に、クラッキング部20に対して、ガソリンや空気や水蒸気を別々に供給する場合には、上記拡散によってガスをより均一に混合する効果が大きい。

【0137】クラッキング部20において温度分布状態を平均化するための他の構成として、クラッキング部20に対して、昇温させた酸素（空気）を分割供給する構成を挙げることができる。すなわち、図1に示した燃料電池装置10では、クラッキング部20に供給する酸素は、その全量を燃料ガス流路74を介して入り口部から供給することとしたが、この酸素の一部を、クラッキング部20のより下流側において供給することとすればよい（図2（D）参照）。発熱反応であるガソリンの燃焼反応は、酸素が供給される領域で活発に進行するため、このように酸素を分割供給することで、燃焼反応が活発に進行する領域を分散させて、温度分布状態を平均化することができる。

【0138】また、酸素を分割供給するのに加えて、ガソリンも分割供給することとしても良い。あるいは、クラッキング部20の入り口部から充分量の酸素を供給する場合には、ガソリンだけを分割供給することとしても良い。このような場合にも、燃焼反応が活発に進行する領域を分散させて、温度分布状態を平均化することによる同様の効果を得ることができる。ここで、酸素やガソリンを分割供給する際には、その分割の程度は、図2（D）に示したように2段階に限るものではなく、分割

供給する回数を増やすほどピークを抑える効果が高くなる。配管の複雑化などの影響を考慮して、適宜設定すればよい。

【0139】（2-3-4）クラッキング部20における昇温促進手段：クラッキング部20においてガソリンの分解を行なう際には、クラッキング部20の入り口部において、供給されるガスの温度を、分解反応の活性が十分に高くなる温度にまで速やかに昇温させることが、クラッキング部20における反応の効率を向上させるために重要である。すなわち、クラッキング部20の入り口部ではガソリンの燃焼反応が開始することで次第に内部温度が上昇して分解反応の活性も上昇するが、クラッキング部20の入り口部付近での昇温時間を短縮することで、また、充分な温度になるように昇温しつつある領域をより縮小することで、より充分に分解反応の活性を確保することが可能となる。

【0140】クラッキング部20の入り口部における昇温時間を短縮する方法としては、例えば、クラッキング部20の入り口部にヒータなどの加熱手段を設ける方法を挙げることができる。あるいは、クラッキング部20の入り口部付近において、ガソリンの完全酸化反応（完全燃焼反応）を進行させ、この完全酸化反応で生じる熱を利用することとしても良い。このような構成を図3に示す。

【0141】図3では、クラッキング部20の上流側に、ガソリンの完全酸化反応を行なわせる完全酸化部を設ける構成を示した。この完全酸化部に対しては、所望の熱を生じるのに必要なガソリンと、これを完全酸化させるのに充分な量の酸素とが供給され、供給されたガソリンの完全酸化反応によって完全酸化部で生じた高温のガスは、クラッキング部20に供給される。また、クラッキング部20では、その入り口部でさらにガソリンと空気とが供給される。このように、クラッキング部20は、内部で進行する反応に供されるガソリンおよび空気と共に、完全酸化部から高温ガスが供給されるため、その入り口部は直ちに昇温し、部分酸化反応である燃焼反応と分解反応とは、速やかに高い活性で進行することが可能となる。

【0142】なお、図3では、完全酸化部はクラッキング部20と別体で表わしたが、両者を一体で形成し、クラッキング部20の入り口部からは、完全酸化反応に供するガソリンと空気とを供給し、より下流側で、部分酸化反応および分解反応に供するガソリンおよび空気を供給することとしても良い。また、完全酸化反応を利用するこのような構成において、水蒸気は、完全酸化部の入り口部から供給することとしても良いし、クラッキング部20の入り口部から供給することとしても良い。あるいは、改質器の入り口部で供給することとしても良い。水蒸気を上記反応に供するのに先立って水蒸気を昇温させるのに要する熱量や、クラッキング部20における煤

形成の程度、改質反応で要する水蒸気量等を考慮して、各部への供給量を適宜設定すればよい。

【0143】また、このように完全酸化部（あるいはクラッキング部20の上流側）で十分な熱を発生可能となる構成においては、クラッキング部20の内部（あるいはクラッキング部20の下流側）では、部分酸化反応である燃焼反応を行なうことなくガソリンの分解反応だけを行なうこととしても良い。このような場合には、完全酸化部とクラッキング部20の間では、空気は供給しない、あるいは、クラッキング部20内で燃焼反応が進行しない程度に抑えた量の空気を供給すればよい。

【0144】上記のような昇温促進手段をクラッキング部20に設ける構成は、燃料電池装置の始動時において暖機時間を短縮することが可能であるため、停止と始動を繰り返す燃料電池装置においては特に有利である。

【0145】クラッキング部20でガソリンを分解して得た炭化水素は、改質器36で改質反応に供されるが、この改質器36が備える改質触媒としては、白金など種々の貴金属系の触媒を選択することができる。クラッキング部20でガソリンを分解する程度（炭素数がどのくらいになるまで分解するかという程度）に応じて、この炭化水素が効率よく改質できるように、改質触媒を適宜選択すると共に改質反応温度を適宜制御すればよく、このような構成とすることによって、十分に高い効率で改質反応を進行させることができ、改質器をより小型化することが可能となる。なお、本実施例では、クラッキング部20において上記燃焼反応および分解反応が進行する際の条件を、ガソリンを分解して成る炭化水素の炭素数が値4以下になるように制御することとしており、改質器36が備える改質触媒および改質反応温度は、炭素数が値4以下の炭化水素に適合するように設定した。

【0146】また、図1に示した燃料電池装置10では、蒸発器34に供給するのに先立ってガソリンと水とを混合することとしたが、ガソリンと水とを別個に昇温・気化させた後に、クラッキング部20に供給する前にこれらを混合することとしても良い。このような構成の燃料電池装置10Aを図4に示す。燃料電池装置10Aは、蒸発器34において、ガソリンと水とが別個に昇温・気化される。また、ブロワ55から供給される空気も、蒸発器34において昇温される。この燃料電池装置10Aでは、蒸発器34とクラッキング部20との間に混合部35が設けられており、蒸発器34で昇温・気化されたガソリンと水蒸気と空気とは、混合部35で混合された後にクラッキング部20に供給される。もとより、ブロワ55から供給される空気は、蒸発器34を介することなく混合部35に供給することとしても良い。

【0147】混合部35は、これら複数種のガスを均一に混合するための部材である。このようにガスを均一に混合する部材を設けることで、液体同士の状態、あるいは液体と気体の状態で上記流体を混合する場合に比べ

て、混合の動作を確実にこなうことが可能となり、クラッキング部20に供給するガスの成分の均一性をより十分に確保することが可能となる。混合部35においてガスを均一に混合するための構成としては、例えば、混合部35内にフォームなどの多孔質体を配設する構成を挙げることができる。このような構成とすることで、内部を通過するガスの拡散速度を向上させ、均一に混合することができる。あるいは、クラッキング部20内を通過するガス流にスワール（旋回流）を発生させることによって、ガスの混合を促すこととしても良い。また、混合部35内に上記複数種のガスを供給する際に、少なくとも1種類のガスを加圧供給することで噴流と成し、衝突拡散を利用することで混合を促進することとしても良い。さらに、混合部35内にフィンを設けてこれを回転させるなどの構成を有する攪拌装置を設け、ガスの混合を機械的に促進することとしても良い。なお、クラッキング部の入り口部から下流側にかけて配設するメッシュやハニカムなど、温度分布平均化手段として既述した構成を、上記ガスを均一に混合するための部材として用いて、混合部35に相当する構造をクラッキング部と一体で形成することとしても良い。

【0148】（3）負荷変動時のクラッキング部における反応の制御について：上記実施例の燃料電池装置10において、燃料電池40に接続される負荷が略一定である場合には、クラッキング部20において、供給するガソリンおよび空気などのガス量や反応温度などの運転条件を所定の一定条件とすれば、ガソリンの分解反応を望ましい程度に安定して行なうことが可能となる。しかしながら、燃料電池40に接続される負荷が変動する場合には、ガソリンの分解反応を望ましい程度に安定して行なうためには、クラッキング部20における運転条件を負荷変動に応じて制御する必要がある。

【0149】上記負荷が変動して負荷が大きくなったときには、クラッキング部20に供給される気体の流量が多くなるため、クラッキング部20における滞留時間が短くなる。これとは逆に、負荷が小さくなったときには、クラッキング部20における滞留時間が長くなる。したがって、負荷が大きいたときには、滞留時間が短いために熱分解反応が不十分となって、所望の程度にまで（例えば、炭素数が値4程度になるまで）十分にガソリンが分解されなくなるおそれがある。ガソリンの分解が不十分であると、炭素数が値4程度の炭化水素を想定した上記実施例の燃料電池装置10では、改質器36において非所望の程度に煤が生成されたり、改質反応の効率が非所望の程度に低下したりするおそれがある。また、負荷が小さいときには、クラッキング部20内における滞留時間が長くなることによって、酸化反応が過剰に進みすぎて酸素不足の状態となり、クラッキング部20内で非所望の程度に煤が生成されるという不都合を生じる。したがって、クラッキング部20において、負荷変

動に対応して反応時の滞留時間や反応速度を制御することにより、負荷変動時にも常に所望の程度に十分にガソリンを分解すると共に、クラッキング部20内で煤が生じるのを防止可能となる。以下に、このような負荷変動に対応してクラッキング部20で行なう制御について説明する。

【0150】(3-1) 反応速度の制御について：

(3-1-1) 供給酸素量による制御：高負荷時に熱分解反応が不十分となったり低負荷時に煤形成が増加するのを防止するための方法として、クラッキング部20における反応速度を制御する方法が挙げられる。すなわち、高負荷時には、反応速度を速めることによってクラッキング部20において十分に熱分解を進行させることが可能となり、低負荷時には、反応速度を遅くすることによってクラッキング部20内で酸素不足となるのを防止し、煤形成を抑えることが可能となる。

【0151】反応速度を制御するための方法の一つに、供給酸素量の制御がある。クラッキング部20に供給するガソリン量に対する酸素量の割合（既述したO/C値）を増加させると、燃焼反応を活性化させることによって、クラッキング部20で進行する反応全体の速度を速めることができる。また、クラッキング部20に供給するガソリン量に対する酸素量の割合（O/C値）を減少させると、燃焼反応の活性を低下させることによって、クラッキング部20で進行する反応全体の速度を遅くすることができる。したがって、負荷が大きくなったときにはO/C値を大きくし、負荷が小さくなったときにはO/C値を小さくする制御を行なうことで、クラッキング部20での煤形成を抑えつつ、ガソリンを分解する反応を充分に行なわせることが可能となる。

【0152】図5は、燃料電池40に接続される負荷の大きさと、煤の形成を抑えつつクラッキング部20での反応の活性を充分に確保するために望ましいO/C値との関係を表わす説明図である。図5に示すように、煤の形成を抑えつつ反応の活性を充分に確保することが可能となる条件（以下、クラッキング条件という）に対応するO/C値は、負荷の大きさが大きくなるにしたがって大きくなる値として、負荷の大きさに対応して所定の幅を持って定まる値である。O/C値が、図5に示したクラッキング条件に含まれる値よりも小さいときには、クラッキング部20で進行する反応が不十分となり、O/C値がクラッキング条件に含まれる値よりも大きいときには、上記したように燃焼反応が活性化しすぎることににより非所望の程度に煤が形成されることになる。

【0153】このように、本実施例の燃料電池装置10では、クラッキング部20におけるO/C値は、燃料電池40に接続される負荷の大きさに応じて0.2～1.2の範囲で制御される。また、図5では、横軸を負荷の大きさとして、望ましいO/C値との関係を示したが、負荷によって定まる供給ガソリン量（クラッキング部2

0に供給するガソリン量）やクラッキング部20に供給する全ガス量を横軸の変数とした場合にも、望ましいO/C値との関係は図5と同様になる。

【0154】なお、実際に制御を行なう際に、どの程度負荷が変動したときにO/C値を変更するように制御するかは、クラッキング部20の性能等に応じて適宜設定すればよい。図5に対応するように負荷に応じてO/C値を設定し、負荷変動に伴ってO/C値を段階的に変更することとしてもよいし、負荷の大きさが所定の値を超えたとき、あるいは所定の値以下となったときに、基本のO/C値よりも高いあるいは低い一定値に変更することとしてもよい。負荷変動に応じたO/C値の制御は、例えば、燃料電池40に接続される負荷がとり得る各値に応じて予め設定されるO/C値をマップとして制御部60に記憶し、負荷の大きさに関する情報を入力しつつこのマップを参照することとすればよい。

【0155】上記のように負荷に応じてO/C値を制御する場合にも、負荷変動が激しいときなどには、負荷変動に応じてO/C値を制御する際の応答性が不十分となる場合が考えられる。そのような場合には、一時的に酸素量が過剰あるいは不足となるおそれがある。ここで、クラッキング部20において、蒸発器34から供給される混合気体と共に上流側の入り口部から酸素を供給する以外に、より下流側の位置からも酸素（空気）を追加供給可能な構成とすれば（図2（D）参照）、クラッキング部20で反応が進行する途中で酸素を追加することによってクラッキング部20内で酸素不足が生じるのを抑えて、反応不足となったり煤が形成されるのを防止することができ、望ましい。

【0156】図2（D）に示したように、クラッキング部20における反応途中で酸素を追加供給する場合には、クラッキング部20の内部（例えば、クラッキング部20の中程や出口部付近）に酸素センサを設け、クラッキング部20内を通過するガス中の酸素濃度を検出することによって酸素不足を判定したり、クラッキング部20内に温度センサを設けて、内部温度が所定の温度よりも低下したときには酸素不足と判定して、酸素の追加供給を行なうこととしてもよい。既述したように、クラッキング部20に対して所定量の酸素を供給する際に、この酸素を分割供給する構成は、クラッキング部20の内部温度の分布状態を平均化する効果を奏するが、検出した酸素濃度やクラッキング部20の内部温度に基づいて、入り口部よりも下流から供給する酸素量をさらに制御する構成は、酸素不足を防止する上で有用である。これによって、クラッキング部20の内部においてO/C値の補正を行ない、酸素不足となるのを防ぐことができる。なお、クラッキング部20において酸素を追加供給する際には、クラッキング部20内でのガスの流れ方向に沿って、複数箇所から追加供給可能としても良い。

【0157】(3-1-2) プラズマ利用時の制御：ク

クラッキング部20で進行する反応の速度を制御して、負荷変動に対応する他の方法として、クラッキング部20に既述したプラズマ発生部を設けてプラズマ発生時の供給電圧を制御する方法を挙げることができる。上記O/C値の制御と同様に、プラズマ発生時の供給電圧を上げると、クラッキング部20で進行する分解反応を促進することができる。また、上記供給電圧を下げると、クラッキング部20で進行する分解反応を抑制することができる。したがって、負荷が大きくなったときにはプラズマ発生部における供給電圧を大きくし、負荷が小さくなったときには供給電圧を小さくする制御を行なうことで、クラッキング部20での煤形成を抑えつつ、ガソリンを分解する反応を充分に行なわせることが可能となる。

【0158】クラッキング部20にプラズマ発生部を設けて、ガソリンを分解する動作をプラズマ発生部における供給電圧によって制御する場合には、燃料電池40に接続される負荷の大きさと、煤の形成を抑えつつクラッキング部20での反応の活性を充分に確保するための望ましい供給電圧との関係は、図5と同様であり、図5において縦軸をO/C値から供給電圧に変更すればよい。すなわち、煤の形成を抑えつつ反応の活性を充分に確保することが可能となる条件（クラッキング条件）に対応する供給電圧は、負荷の大きさが大きくなるにしたがって大きくなる値として、負荷の大きさに対応して所定の幅を持って定まる値である。負荷の変動に対応して供給電圧を制御する動作も、負荷の変動に対応してO/C値を変更する制御と同様に行なうことができる。

【0159】また、クラッキング部20にプラズマ発生部を設ける構成において、既述したようにクラッキング部20に水蒸気を供給する構成とするならば、クラッキング部20において、プラズマによって水分子が分解されて成るOHラジカルが生じ、この反応性の高いOHラジカルが、クラッキング部20内において（ガソリンを分解して成る分子が有する）炭素原子との反応に利用可能となる。したがって、炭素原子同士が結合する反応が抑えられ、煤生成を抑制する優れた効果を得ることが可能となる。

【0160】（3-1-3）供給ガス温による制御：上記した説明では、クラッキング部20に供給する酸素量を制御する、あるいは、プラズマ利用時には供給電圧を制御することとしたが、クラッキング部20に供給するガスの温度を制御することとしてもよく、これによってもクラッキング部20で進行する反応の速度を制御して、負荷変動に対応することが可能となる。クラッキング部20に供給するガスの温度は、図1に示した燃料電池装置10では、蒸発器34における加熱の程度によって調節することができる。すなわち、燃焼触媒を備える加熱部50に対して燃焼のための燃料として供給するガソリン量およびアノードオフガス量を増減することによ

て、クラッキング部20に供給するガスの温度を昇降することができる。

【0161】したがって、負荷が大きくなったときには、加熱部50に供給する燃焼のための燃料量を増やして上記ガス温度を上昇させることによって、クラッキング部20内で進行する反応を活発化させ、充分に熱分解されていないガソリンが改質器36に供給されてしまうのを防止することができる。また、負荷が小さくなったときには、加熱部50に供給する燃焼のための燃料量を減少させて上記ガス温度を低下させることによって、クラッキング部20内で燃焼と熱分解の反応がよりゆっくりと進行するようにして、クラッキング部20内で酸素不足が生じて煤が形成されるのを防止することができる。

【0162】なお、図1に示した燃料電池装置10では、ガソリンと水とは蒸発器34を介してクラッキング部20に供給しているため、加熱部50に供給する燃焼のための燃料量を制御すると、クラッキング部20に供給するガソリンと水との両方の温度が変化する。ここで、ガソリンと水とは別々の加熱手段によって加熱した後クラッキング部20に供給することとしてもよい。このような場合には、ガソリンと水とのうちの少なくとも一方について、加熱の程度を負荷に応じて制御することとしても良い。あるいは、ブロワ55から供給される空気を加熱する手段を設け、空気の加熱の程度を負荷に応じて制御することとしてもよい。クラッキング部20に供給される流体のうちの少なくとも一種類の流体について温度制御を行ない、最終的にクラッキング部20における反応に供される流体の温度が負荷に応じて調節されるならば、ガス温の制御による既述した効果を得ることができる。

【0163】（3-2）クラッキング部における滞留時間の制御について：

（3-2-1）クラッキング部20内圧力の制御：上記した説明では、クラッキング部20内で進行する反応の速度を制御して負荷変動に対応することとしたが、クラッキング部20で反応が進行する際の滞留時間を制御することとしても良い。負荷が大きいたときには、滞留時間がより長くなるように制御することによって充分に分解反応を行なわせることが可能となる。また、負荷が小さいときには、滞留時間がより短くなるように制御することによって酸素不足となるのを防止し、煤の形成を抑えることができる。滞留時間を制御する方法の一つに、クラッキング部20内の圧力を制御する方法がある。

【0164】滞留時間とは、所定の系（クラッキング部20）に含まれる物質（供給されるガス中の物質）が1回置き換わるのに要する時間である。したがって、クラッキング部20における滞留時間は、クラッキング部20の容積を、クラッキング部20に供給されるガスの流量（体積流量）で割った値として求められる。クラック

ング部20内における圧力を上昇させると、クラッキング部20に供給されるガスの総量（質量）が一定である場合には、クラッキング部20に供給されるガスの流量（体積流量）は減少し、滞留時間は長くなる。反対に、クラッキング部20における圧力を低下させると、クラッキング部20に供給されるガスの総量（質量）が一定である場合には、クラッキング部20に供給されるガスの流量（体積流量）は増加し、滞留時間は短くなる。

【0165】そのため、負荷が大きくなるときには、クラッキング部20内の圧力を上昇させることによって滞留時間を長くすればよく、これによって十分に熱分解されていないガソリンが改質器36に供給されてしまうのを防止することができる。また、負荷が小さくなるときには、クラッキング部20内の圧力を低下させることによって滞留時間を短くすればよく、これによって反応が進行しすぎて酸素不足となり煤が形成されてしまうのを防ぐことができる。

【0166】このようなクラッキング部20における圧力は、例えば、クラッキング部20にガスを供給する入り口部、あるいはクラッキング部20からガスが排出される出口部に圧力調整バルブを設けることにより制御可能となる。あるいは、クラッキング部20内の圧力だけを調節するのではなく、クラッキング部20に加えて、下流側の改質器36や、あるいはさらにシフト部37まで、あるいはさらにCO選択酸化部までを含めた複数の部材全体の圧力を、共通する圧力調整バルブを用いて同時に制御することとしても良い。各部における滞留時間が許容できる範囲内となるならば、このように同時に内部圧力を制御することが可能となる。クラッキング部20を含む複数の部材の内部圧力を、共通する圧力調整バルブを用いて同時に制御する場合には、この圧力バルブをクラッキング部20よりも下流側の部材の出口部に設けることとすればよい。クラッキング部20に比べて下流側の部材ほど運転温度が低いため、このような構成とすれば、クラッキング部20のような高温部で動作する圧力調整バルブを用意する必要がなく、汎用性の高い、より低温用の圧力調整バルブを用いることが可能となって望ましい。

【0167】（3-2-2）水蒸気量による制御：クラッキング部20における滞留時間を制御する方法として、クラッキング部20に供給する水蒸気量を制御する方法がある。既述したように、クラッキング部20で進行する反応において水蒸気は、急激な温度上昇を抑えることができ、ガソリンを構成する炭化水素の分解反応を進行させ煤生成を抑制する効果を有するため、図1に示した本実施例の燃料電池装置10では、クラッキング部20に対して、ガソリンや空気と共に水蒸気を供給している。このような構成において、クラッキング部20に供給する水蒸気量を増加させると、クラッキング部20に供給するガス全体の量が増加する（例えば、圧力一定

で有れば体積流量が増加する）ため、それに応じて滞留時間が短くなる。したがって、負荷が小さくなったときには、クラッキング部20に供給する水蒸気量を多くして滞留時間を短くすればよく、これによって反応が進行しすぎて酸素不足となり煤が形成されてしまうのを防ぐことができる。また、負荷が大きくなるときには、クラッキング部20に供給する水蒸気量を少なくして滞留時間を長くすればよく、これによって十分に熱分解されていないガソリンが改質器36に供給されてしまうのを防止することができる。

【0168】なお、クラッキング部20に供給する水蒸気量を増やすと、滞留時間が短くなると共に、クラッキング部20において燃焼反応による温度上昇が抑えられる。したがって、負荷が小さくなったときには、供給する水蒸気量を増やすことによって、滞留時間が短くなることによる効果の他に、温度上昇が抑えられる効果によって、反応が進行しすぎて酸素不足となるのを抑えることができる。なお、供給する水蒸気量は、既述したようにS/C値として制御することができ、本実施例の燃料電池装置10では、燃料電池40に接続される負荷の大きさに応じて、S/C値が値0～3となる範囲で制御することとした。

【0169】（3-2-3）クラッキング部20の容積の制御：また、クラッキング部20における滞留時間を制御する方法として、クラッキング部20で実際に反応が進行する空間の容積（以下、クラッキング部容積と呼ぶ）を変更する方法がある。負荷が小さくなったときには、クラッキング部容積を小さくして滞留時間を短くすればよく、負荷が大きくなったときには、クラッキング部容積を大きくして滞留時間を長くすればよい。

【0170】以下、図6から図10に、クラッキング部容積を変更可能とするために、本実施例の燃料電池装置10が備えるクラッキング部20が取りうる構成の例を示す。図6は、クラッキング部容積を変更することが可能なクラッキング部20Aの構成の概略を表わす説明図である。クラッキング部20Aは、第1反応室21、第2反応室22、第3反応室23を備えている。ここで、各反応室は、燃料ガス流路74側から、第1反応室21、第2反応室22、第3反応室23の順で直列に接続されており、第1反応室21には、燃料ガス流路74から、空気を含有する混合気体が供給される。第1反応室21、第2反応室22、第3反応室23には、それぞれ、ガス排出路80A、ガス排出路81A、ガス排出路82Aが接続されており、これらのガス排出路は、改質器36に連通する燃料ガス流路75に接続している。また、これらのガス排出路には、それぞれ、バルブ80B、81B、82Bが設けられている。

【0171】したがって、これらのバルブを切り替えることによって、クラッキング部20A内を通過するガスの流路を切り替えることができる。すなわち、バルブ8

0 Bを開状態、バルブ8 1 Bおよび8 2 Bを閉状態とすれば、クラッキング部2 0 Aに供給されたガスは、第1反応室2 1において燃焼反応および熱分解反応を進行した後、第2反応室2 2および第3反応室2 3を経由することなく、ガス排出路8 0 Aを介して燃料ガス流路7 5に排出される。また、バルブ8 1 Bを開状態、バルブ8 0 Bおよび8 2 Bを閉状態とすれば、クラッキング部2 0 Aに供給されたガスは、第1反応室2 1および第2反応室2 2において燃焼反応および熱分解反応を進行した後、第3反応室2 3を経由することなく、ガス排出路8 1 Aを介して燃料ガス流路7 5に排出される。バルブ8 2 Bを開状態、バルブ8 0 Bおよび8 1 Bを閉状態とすれば、クラッキング部2 0 Aに供給されたガスは、第1ないし第3の3つの反応室において燃焼反応および熱分解反応を進行した後、ガス排出路8 2 Aを介して燃料ガス流路7 5に排出される。

【0 1 7 2】バルブ8 0 B～8 2 Bは、それぞれ制御部6 0に接続されており、制御部6 0からの駆動信号によって開閉される。クラッキング部2 0 Aを備える燃料電池装置においては、クラッキング部における滞留時間がより望ましい値となるように、負荷の大きさに応じて使用すべき反応室の数が予め設定されている。制御部6 0は、負荷の大きさに応じて各バルブの開閉状態を切り替え、クラッキング部2 0 A内を通過するガスの流路を制御することによって所望の数の反応室だけを用いることとし、クラッキング部容積（滞留時間）を調節する。

【0 1 7 3】図7は、クラッキング部容積を変更可能となる他の例として、クラッキング部2 0 Bの構成の概略を表わす説明図である。クラッキング部2 0 Bは、ハニカムチューブによって形成された反応室2 4の入り口側に、可動式マスク2 5を備えている。反応室2 4の入り口部に設けられた可動式マスク2 5は、図8に示す羽根車型のマスク2 5 Aを2枚重ね合わせた構造を有しており、このマスク2 5 Aはハニカムチューブの入り口側端部に接した状態で、反応室2 4の入り口部断面の略中心部に設けられた図示しない回転軸において回転自在に支持されている。この可動式マスク2 5によって端部を塞がれた領域のハニカムチューブは、燃料ガス流路7 4から供給される空気を含む混合気体の供給を受けることができなくなり、マスク2 5 Aの重なり具合を変えることによって、上記混合気体を供給可能なハニカムチューブのセルの数を増減することができる。2枚のマスク2 5 Aが全く重ならない状態となったとき、反応室8 6の入り口部は完全に閉じられた状態となり（開口率0 %）、2枚のマスク8 7 Aが完全に重なったとき、改質ガスの供給を受けるハニカムチューブのセルの数は最大となる（開口率1 0 0 %、滞留時間は最も長い）。可動式マスク2 5は制御部6 0に接続されており、制御部6 0は、負荷の大きさに応じて可動式マスク2 5に駆動信号を出力し、2枚のマスク2 5 Aの重なり具合を制御す

ることで、クラッキング部容積を制御する。

【0 1 7 4】図9は、クラッキング部容積を変更可能となる他の例として、クラッキング部2 0 Cの構成の概略を表わす説明図である。クラッキング部2 0 Bでは、入り口部において塞がれた面積を増減する機構を設けることとしたが、クラッキング部2 0 Cは、クラッキング部にガスを導入する流路を分割することによって、クラッキング部容積を増減している。クラッキング部2 0 Cは、ハニカムチューブで構成された反応室2 6を備え、燃料ガス流路7 4との接続部と反応室2 6との間は3本のガス分岐路8 8 A、8 9 A、9 0 Aに分岐しており、各改質ガス分岐路はそれぞれバルブ8 8 B、8 9 B、9 0 Bを備えている。これらのバルブは制御部6 0からの駆動信号によって開閉状態が制御され、バルブが開状態となっているガス分岐路に対応する位置に開口しているセルだけが、空気を含む混合気体の供給を受けることができる。制御部6 0は、負荷の大きさに応じて各バルブに駆動信号を出力し、負荷に応じた所定の（数の）バルブを開状態とすることで、クラッキング部容積を制御する。

【0 1 7 5】さらに、図9のクラッキング部2 0 Cのように混合気体の導入系を可変とする際に、導入路を分割する代わりに、クラッキング部と接続する燃料ガス流路7 4端部にガス噴射角可変ノズルを設け、燃料ガス流路7 4からハニカムチューブへ向けて、空気を混合された混合気体を所定の角度で噴射して供給することとしてもよい。このような構成とすれば、上記開状態とするバルブの数を変える代わりに、ノズルから混合気体を噴射する際の噴射角を変え、混合気体が供給されるセルの数を制御する（クラッキング部容積を制御する）ことができる。もとより、燃料ガス流路7 4端部に複数のノズルを設け、ハニカムチューブへ混合気体を噴射するノズルの数を負荷に応じて選択することによって、クラッキング部容積を制御することとしても良い。

【0 1 7 6】図1 0は、クラッキング部容積を変更可能となる他の例として、クラッキング部2 0 Dの構成の概略を表わす説明図である。クラッキング部2 0 Cでは、混合気体の導入系を分割することによってクラッキング部容積を増減することとしたが、クラッキング部2 0 Dは、クラッキング部からの気体の排出系を分割することによってクラッキング部容積を増減している。クラッキング部2 0 Dは、クラッキング部2 0 Cと同様の反応室2 6を有している。反応室2 6の入り口部は、クラッキング部2 0 Cと異なり分岐路を形成していないが、出口部においては、燃料ガス流路7 5との接続部との間にガス分岐路8 8 C、8 9 C、9 0 Cを形成している。各ガス分岐路はそれぞれバルブ8 8 D、8 9 D、9 0 Dを備えており、これらのバルブは制御部6 0からの駆動信号によって開閉状態が制御され、バルブが開状態となっている燃料ガス分岐路に対応する位置に開口しているセル

だけが、混合気体の供給を受けることができる。制御部 60 は、負荷の大きさに応じて各バルブに駆動信号を出し、負荷に応じた所定の（数の）バルブを開状態とすることで、クラッキング部容積を制御する。

【0177】なお、上記クラッキング部 20A、クラッキング部 20C、クラッキング部 20D は、その内部を 3 つに分割してクラッキング部容積を 3 段階に制御可能としたが、クラッキング部内を 3 以外の複数の数に分割することとしてもよい。滞留時間をより望ましい値に近づけるために、負荷に応じてクラッキング部容積を変更することができればよい。

【0178】（4）燃料電池装置 10 の変形例：既述したように、クラッキング部 20 における滞留時間を制御することによって、負荷変動時にも、クラッキング部内で進行する反応を所望の状態に維持し、分解反応が不十分となったり非所望の量の煤が生成されるのを防止したりすることができる。負荷に応じた滞留時間の制御は、上記したように、クラッキング部 20 内の圧力や、クラッキング部 20 に供給する水蒸気量や、クラッキング部容積を制御する以外に、図 1 に示した燃料電池装置 10 において、部材間の接続状態に変更を加えることによっても実現可能となる。このような構成の例を以下に説明する。

【0179】（4-1）カソードオフガスの利用：図 11 は、燃料電池装置 10 の変形例としての燃料電池装置 110 の構成を表わす説明図である。図 11 および、後述する図 12 と図 13 に示した燃料電池装置は、図 1 の燃料電池装置 10 とほぼ同様の構成を有しているため、共通する構成については詳しい説明を省略する。また、図 11 ないし図 13 においては、図 1 に示した制御部 60、および、制御部 60 と各部との接続の様子は記載を省略したが、図 11 ないし図 13 の燃料電池装置においても、図 1 の燃料電池装置 10 と同様に、各部と制御信号をやり取りする制御部 60 を有している。燃料電池装置 110 においては、燃料電池 40 における電気化学反応に供された後にカソード側から排出されるカソードオフガスが通過するカソードオフガス流路 44 は、燃料ガス流路 74 に接続している。すなわち、燃料電池装置 110 では、蒸発器 34 から供給される混合気体およびブロワ 55 から供給される空気と共に、カソードオフガスがクラッキング部 20 に供給可能となっている。また、カソードオフガス流路 44 は、その途中に流路調整弁 45 を備えており、流路調整弁 45 において分岐路 46 に分岐している。流路調整弁 45 を介して分岐路 46 側に供給されたカソードオフガスは、そのまま外部に排出される。したがって、流路調整弁 45 を制御することによって、カソードオフガスのうち、クラッキング部 20 に供給される割合と外部に排出される割合とを制御することができる。

【0180】カソードオフガスは、主として窒素と二酸

化炭素と酸素とを含有する気体であり、その酸素濃度は、空気中の酸素濃度よりも低く、燃料電池 40 における電気化学反応の効率に応じた所定の濃度となっている。ここで、カソードオフガス中の酸素以外の成分は、クラッキング部 20 で進行する燃焼反応および分解反応に直接には関与しない。したがって、図 11 に示した燃料電池装置 110 では、クラッキング部 20 に供給する酸素の少なくとも一部を、ブロワ 55 が供給する空気に代えてカソードオフガスによって供給することとし、クラッキング部 20 に供給するカソードオフガスを調節して、クラッキング部 20 に供給するガス量の総量を制御することによって、クラッキング部 20 における滞留時間を制御している。すなわち、負荷が小さくなる時には、クラッキング部 20 に所定量の酸素を供給するために用いるカソードオフガスの割合をより大きくすることによって、滞留時間をより短くすることができ、過剰な煤形成を抑えることが可能となる。また、負荷が大きくなる時には、クラッキング部 20 に所定量の酸素を供給するために用いるカソードオフガスの割合をより小さくすることによって、滞留時間をより長くすることができ、熱分解が不十分となるのを防止することができる。

【0181】あるいは、燃料電池装置 110 において、滞留時間が所定の値であるとき、すなわちクラッキング部 20 に供給するカソードオフガスと空気の合計量が所定の値であるときに、供給するカソードオフガスと空気との割合を調節することによって、クラッキング部 20 に供給する酸素量を制御することとしても良い。供給するカソードオフガスと空気との割合を調節することで、既述した O/C 値の制御（反応速度の制御）を行なうことができる。また、カソードオフガスはクラッキング部 20 の内部温度よりも低温であるため、クラッキング部 20 に供給するカソードオフガスを制御することで、クラッキング部 20 の内部温度の制御（反応速度の制御）を行なうことも可能である。

【0182】（4-2）アノードオフガスの利用：図 12 は、燃料電池装置 10 の変形例としての燃料電池装置 210 の構成を表わす説明図である。燃料電池装置 210 においては、燃料電池 40 における電気化学反応に供された後にアノード側から排出されるアノードオフガスが通過するアノードオフガス流路 79 は、燃料電池装置 10 と同様に加熱部 50 に接続する他に、流路調整弁 96 において分岐路 97 に接続しており、この分岐路 97 は、燃料ガス流路 74 に接続している。すなわち、燃料電池装置 210 では、蒸発器 34 から供給される混合気体およびブロワ 55 から供給される空気と共に、アノードオフガスがクラッキング部 20 に供給可能となっている。したがって、流路調整弁 96 を制御することによって、アノードオフガスのうち、クラッキング部 20 に供給されるガス量と、加熱部 50 に供給されるガス量との

割合を制御することができる。

【0183】アノードオフガスは、主として水素と窒素と二酸化炭素と水蒸気とからなる気体であり、これらの成分は、クラッキング部20で進行する燃焼反応および分解反応に直接には関与しない。したがって、図12に示した燃料電池装置210では、クラッキング部20にアノードオフガスを供給可能とし、供給するアノードオフガスの量を調節して、クラッキング部20に供給するガス量の総量を制御することによって、クラッキング部20における滞留時間を制御している。すなわち、負荷が小さくなるときには、負荷の大きさに応じてより多くのアノードオフガスをクラッキング部20に供給することによって、滞留時間をより短くすることができ、過剰な煤形成を抑えることが可能となる。また、負荷が大きくなるときには、負荷の大きさに応じてより少ないアノードオフガスをクラッキング部20に供給することによって、滞留時間をより長くすることができ、熱分解が不十分となるのを防止することができる。

【0184】あるいは、燃料電池装置210において、アノードオフガスを用いてクラッキング部20の内部温度を制御することも可能である。すなわち、アノードオフガスはクラッキング部20の内部温度よりも低温であるため、アノードオフガスをクラッキング部20に供給するとクラッキング部20の内部温度が低下する。したがって、供給するアノードオフガス量を制御することによって、クラッキング部20の内部温度を制御することができ、これによってクラッキング部20内で進行する反応の速度を制御することが可能となる。

【0185】なお、アノードオフガスには、上記したように水素が含有されるが、水素はエネルギー活性の高い物質であり、クラッキング部20内のような高温下では、ガソリンのような炭化水素系燃料を構成する分子内における炭素同士の結合を攻撃すると考えられ、炭素同士の結合が切断されやすくなることによってクラッキングを促進する効果が期待できる。また、クラッキング部20においては、水素が共存する方が煤ができにくくなるという効果が得られる。すなわち、クラッキング部20の内部において、存在する炭素原子の数に対して水素（原子）の数が多いと、炭素原子同士が結合する反応よりも炭素原子と水素原子とが結合する反応の方が進行しやすくなる。したがって、ガソリンを構成する炭化水素分子において、脱水素反応が進行したり炭素間の結合が切断されたときに、炭素同士が結合する反応（煤形成に至る中間物質を生成する反応）が、炭素と水素が結合する反応（新たに炭化水素を生成する反応）に抑えられ、これによって煤の形成が抑えられる。

【0186】ここで、クラッキング部20に供給したアノードオフガス中の水素と、クラッキング部20内の水素とが反応して成る上記炭化水素は、改質器36において改質反応に供されて、燃料電池40に供するための水

素が生成される。また、クラッキング部20内で炭化水素等を生じなかった水素は、改質器36等を経由して燃料電池40に供給され、再び電気化学反応に利用可能となる。このように、アノードオフガスを用いてクラッキング部20に水素を供給することによって、クラッキング部20における熱分解の効率が向上すると共に、煤が形成される代わりに炭素と水素とが結合して成る炭化水素が生成され、ガソリンを改質する動作全体の効率を向上させることができる。

【0187】（4-3）燃焼排ガスの利用：図13は、燃料電池装置10の変形例としての燃料電池装置310の構成を表わす説明図である。燃料電池装置310においては、加熱部50から排出される燃焼排ガスが、混合気体および空気と共に、クラッキング部20に供給可能となっている。加熱部50は、既述したように、ガソリントタンク30から供給されるガソリンやアノードオフガスの供給を受けて燃焼反応を進行し、蒸発器34で要する熱を発生する部材である。加熱部50で燃焼反応が進行して生じる燃焼排ガスは、既述した各燃料電池装置では、外部に廃棄していた（図示せず）。図13に示した燃料電池装置310は、加熱部50から排出される燃焼排ガスが通過する排ガス路95は、燃料ガス流路74に接続している。また、排ガス路95は、流路調整弁98を介して分岐路99にも接続している。分岐路99側に排出された燃焼排ガスは、そのまま外部に廃棄される。したがって、流路調整弁98を制御部60によって制御することで、燃焼排ガスのうち、クラッキング部20に供給されるガス量と、外部に廃棄されるガス量との割合を制御することができる。

【0188】燃焼排ガスは、主として窒素と二酸化炭素と水蒸気とからなる気体であり、これらの成分は、クラッキング部20で進行する燃焼反応および分解反応に直接には関与しない。したがって、図13に示した燃料電池装置310では、クラッキング部20に燃焼排ガスを供給可能とし、供給する燃焼排ガスの量を調節して、クラッキング部20に供給するガス量の総量を制御することによって、クラッキング部20における滞留時間を制御している。すなわち、負荷が小さくなるときには、負荷の大きさに応じてより多くの燃焼排ガスをクラッキング部20に供給することによって、滞留時間をより短くすることができ、過剰な煤形成を抑えることが可能となる。また、負荷が大きくなるときには、負荷の大きさに応じてより少ない燃焼排ガスをクラッキング部20に供給することによって、滞留時間をより長くすることができ、熱分解が不十分となるのを防止することができる。

【0189】また、上記燃焼排ガスは、クラッキング部20の内部温度よりも高温であるため、クラッキング部20に燃焼排ガスを供給すると、クラッキング部20の内部温度が上昇する。したがって、図13に示した燃料電池装置310の構成において、クラッキング部20に

燃焼排ガスを供給する状態（供給量や供給する位置）を制御することによって、クラッキング部20の内部温度を制御することも可能となる。また、高温の燃焼排ガスは、クラッキング部20の入り口部から供給することによって、既述した昇温促進手段（クラッキング部20の入り口部付近において十分な昇温に要する時間を短縮する手段）として用いることもできる。

【0190】（4-4）反応停止ガスの利用：負荷変動時に、クラッキング部20内における反応の進行状態を所望の状態に近づけるための制御として、供給ガス量の総量やクラッキング部20の容積を調節することによる滞留時間の制御の他に、低温の反応停止ガスを用いる制御も可能である。すなわち、負荷が小さいときには、クラッキング部20内で出口部よりも上流側で分解反応が終了してしまうが、このように反応が終了した改質燃料気体に対して低温の反応停止ガスを供給すれば、内部温度を低下させることによって、分解反応が所望の程度に終了した後にクラッキング部20内で進行するはずである反応の活性を十分に低下させて、煤形成に至る非所望の反応を抑制することができる。例えば、既述した実施例のクラッキング部20においては、その内部温度を600～700℃程度にまで低下させれば、内部で進行する（煤形成に至るような）反応の活性を十分に抑えるこのような効果を得ることができる。

【0191】さらに、このような反応停止ガスを供給することは、温度低下による煤形成抑制の効果に加えて、滞留時間が短くなることにより煤形成が抑えられる効果も得られる。すなわち、反応停止ガスを加えることにより、反応停止ガスを加えた位置よりも下流側ではガス流量が増大して、分解反応が終了した改質燃料気体がクラッキング部20から排出される動作が促進される。これにより、分解反応が終了した後に進行する反応によって非所望の煤形成が行なわれる前に、クラッキング部20から改質燃料気体を排出することが可能となる。

【0192】このような反応停止ガスとしては、クラッキング部20内部で進行する反応の活性を十分に抑えることができる程度に低温のガスであって、下流側の部材で進行する反応に不都合を生じないものであればよい。例えば、水蒸気や空気などを用いることができる。このような構成を図14に模式的に示す。

【0193】反応停止ガスとして空気を用いる場合には、既述したように、クラッキング部20の出口部における酸素濃度を確保することによって、煤形成を抑える効果を得ることもできる。また、クラッキング部20における反応を停止させると共に、改質器で進行する部分酸化反応に要する酸素を確保することもできる。

【0194】また、反応停止ガスとして水蒸気を用いる場合には、改質器で進行する水蒸気改質反応や、シフト部で進行するシフト反応に要する水蒸気を確保することができる。さらに、反応停止ガスとして水蒸気を用いる

場合には、クラッキング部20の入り口部から水蒸気を供給する場合のように、燃焼反応や分解反応の活性が十分に高くなるように予め十分に水蒸気を昇温させる必要がなく、より低い温度でクラッキング部20に供給すればよい。水蒸気の加熱に要するエネルギーを削減することができる。

【0195】また、燃料電池装置において、改質器36が備える触媒によっては、改質器36の内部温度をクラッキング部20の温度に比べて十分に低くする必要があり、改質器36に供給するのに先立って、クラッキング部20から供給される改質燃料気体を降温させる構造が必要となる場合がある。このような場合にも、上記反応停止ガスを用いる構成では、反応停止ガスを加えることで改質燃料気体の温度を低下させることができるため、上記改質燃料気体を降温させる構造を削減あるいは省略することが可能となる。

【0196】さらに、反応停止ガスを加えることによって、クラッキング部20内で進行する反応の活性を抑えると共に、クラッキング部20からの改質燃料気体の排出を促す構成において、反応停止ガスとして予め気化させた水蒸気を供給する構成に代えて、クラッキング部20内に水を直接噴霧する構成とすることも可能である。このような構成とすれば、クラッキング部20内に噴霧された水はクラッキング部20内の熱によって直ちに気化すると共に、気化の際にクラッキング部20内の温度が低下するため、クラッキング部20内で進行する反応の活性を十分に抑えることができる。また、このような場合には、クラッキング部20に供給するのに先立って予め水を気化させるのに要するエネルギーを削減することができる。

【0197】分解反応が十分に進行した後に、クラッキング部20内で非所望の反応がさらに進行することに起因する煤形成を抑えるという上記した効果を十分に得るために、上記反応停止ガスは、クラッキング部20内のガスの流れ方向に沿って複数箇所から供給可能としても良い。負荷の大きさに応じて、反応停止ガスを供給する位置、あるいは供給する量を制御することによって、ガソリンの分解は充分に行なわれると共に煤形成が十分に抑えられ得た改質燃料気体を得ることができる。

【0198】（5）クラッキング部20の間接的な加熱：既述した実施例では、クラッキング部20で進行する熱分解に要する熱は、クラッキング部20内部で進行する燃焼反応（内部発熱源）によって、あるいは、クラッキング部20内に導入される燃焼排ガスなどの高温流体（外部発熱源）によって、熱分解反応に対して直接供給される。すなわち、炭化水素系燃料の熱分解を行なう際に、直接的に伝熱が行なわれる。これに対して、クラッキング部に熱交換器を設け、この熱交換器を介して、クラッキング部20で分解反応に供される気体と、所定の高温流体との間で熱交換可能とし、間接的に伝熱を行

なわせることとしても良い。

【0199】このような構成の一例を図15に示す。図15(A)では、ガソリンの完全酸化反応を行なう完全酸化部を設けている。クラッキング部20内を通過するガスは、完全酸化部で進行する完全酸化反応によって生じる高温の燃焼ガスとの間で、熱交換機を介して熱交換を行なう。

【0200】熱交換器を介して分解反応に要する熱を供給する高温流体としては、上記完全酸化反応で生じる高温の燃焼ガス以外にも種々の流体を用いることができる。例えば、蒸発器34に併設された加熱部50から排出される燃焼排ガスをを用いることが可能である。このような構成を図15(B)に示す。ここでは、図13の燃料電池装置310が備える排ガス路95を通過する燃焼排ガスを、上記高温流体として用いることとした。なお、図15(B)に示した構成では、クラッキング部20の入り口部における昇温時間を短縮するために、クラッキング部20の入り口部付近は、より温度が高い上記完全酸化反応で生じる高温の燃焼ガスとの間で熱交換を行なうこととしたが、加熱部50から排出される燃焼排ガスだけを用いることとしても良い。

【0201】また、燃料電池40から排出されるアノードオフガスをを用いることとしても良い。このような構成を図15(C)に示す。燃料電池40から排出されるアノードオフガスは、燃料電池40の運転温度に対応する所定の温度に昇温しているが、ここでは、アノードオフガス(図15(C)では、図12の燃料電池装置210が備える分岐路97を通過するアノードオフガスとして表わしている)にさらに空気(酸素)を供給して、アノードオフガス中に残留する水素を燃焼させ、さらに昇温させたアノードオフガスを上記高温流体として用いている。なお、図15(C)の構成においても、図15

(B)の構成と同様に、完全酸化部を併設して、より温度が高い燃焼ガスを利用して、クラッキング部20の入り口部における昇温時間の短縮を図ることとした。

【0202】あるいは、燃料電池40から排出されるカソードオフガスをを用いることとしても良い。このような構成を図15(D)に示す。燃料電池40から排出されるカソードオフガスは、燃料電池40の運転温度に対応する所定の温度に昇温しているが、ここでは、カソードオフガス(図15(D)では、図11の燃料電池装置110が備えるカソードオフガス流路44を通過するカソードオフガスとして表わしている)を上記した完全燃焼部に供給することによって、熱交換器を介して完全燃焼部がクラッキング部20内のガスを昇温させる際に、カソードオフガスが有する熱を利用可能とすると共に、カソードオフガス中の酸素を完全燃焼部内で進行する完全燃焼反応で利用可能としている。

【0203】また、燃料電池40として、十分に運転温度が高いものを用いる場合には、燃料電池40から排出

されるアノードオフガスあるいはカソードオフガスを、そのまま上記高温流体として用いることもできる。すなわち、アノードオフガスあるいはカソードオフガスの温度が十分に高いときには、これらのガスを、上記したように燃焼反応に供することなく、上記高温流体として用いることとしても良い。

【0204】以上のように、炭化水素系燃料を分解するために要する熱を、熱交換器を介して供給する場合には、クラッキング部20内で分解反応と共に進行させる燃焼反応の量を削減することが可能となる。したがって、燃焼反応に供するためにクラッキング部20に供給する酸素量を削減すると共に、クラッキング部20から排出される改質燃料気体において、燃焼反応によって生じる二酸化炭素などの量を削減することができ、改質反応で得られる水素リッチガス中の水素濃度をより高くすることができる。

【0205】なお、上記した完全燃焼部などで発生する高温流体によって、熱交換器を介して充分量の熱がクラッキング部20内部に供給される場合には、クラッキング部20は、部分酸化反応と分解反応との両方を進行するのに代えて、炭化水素系燃料の分解反応だけを行なうこととしても良い。このような場合には、クラッキング部20に対しては、クラッキング部20内で燃焼反応が進行しない程度に抑えた量の空気を供給すればよい。このような構成とすれば、改質反応に供するガス中で改質反応に先立って酸化反応を行なう必要がないため、酸化反応に伴って生じる二酸化炭素量を削減し、改質反応を経て得られる水素リッチガス中の水素濃度(燃料電池40に供給される燃料ガス中の水素分圧)をより高くすることができるという効果を奏する。

【0206】負荷変動時に、クラッキング部20内での煤形成を抑えつつ分解反応を充分に進行させるための構成として、クラッキング部における反応速度の制御や滞留時間の制御に関わる種々の構成について述べたが、これらの構成を実際に燃料電池装置に適用するときには、これらのうちの複数の構成を同時に備えることとしてもよい。複数の手段によって制御を行なうことで、より迅速に負荷変動に対応したり、燃料電池装置10全体のエネルギー効率をより向上させることが可能となる。例えば、負荷に応じてO/C量を制御すると共に、クラッキング部の内部温度やクラッキング部内部の酸素濃度を検出し、これらに基づいて、入りガス温度をさらに制御することとすれば、より精度良く、各反応を所望の状態にすることができる。

【0207】既述した実施例では、炭化水素系燃料としてガソリンを用いる構成について説明したが、ガソリンの他、ナフサや軽油など他種の炭化水素系燃料を用いることとしても良い。このように炭素数が値4以上の高級炭化水素系燃料を用いて水素リッチガスを生成する場合には、改質反応に先立って、炭素数がより小さくなるよ

うに上記高級炭化水素系燃料を分解することによって、改質反応の際に煤の形成を抑えたり、改質反応の効率を向上させるといった同様の効果を、充分に得ることができる。

【0208】なお、既述した実施例では、クラッキング部に供給する炭化水素系燃料の量は、負荷の大きさに応じて、所望量の電力を得るのに要する水素を発生するのに必要な量として決定することとした。このようにして炭化水素系燃料の量を決定しても、燃料電池装置を構成する各部が負荷に対して充分な応答性を有していないときには、最終的に燃料電池40に供給される水素量が、負荷量に一致しないおそれがある。水素量が過剰であれば、燃料電池40における発電効率が低下して無駄であり、水素量が不足すると、負荷要求に対応する必要量の電力を燃料電池40で発電することができない。ここで、既述した各燃料電池装置を電源として備える装置が、燃料電池40の他に、負荷に対して電力を供給可能となる2次電池を備える場合には、このような不都合を防ぐことができる。すなわち、負荷に対して過剰に発電可能となる量の水素が燃料電池40に供給されるときには、過剰な電力で上記2次電池を充電すればよい。また、燃料電池40に供給される水素では負荷に対応する電力を十分に発電できないときには、不足する電力を上記2次電池によって補えばよい。さらに、燃料電池装置を構成する各部が負荷に対してより充分な応答性を有していても、既述した各燃料電池装置を電源として備える装置が上記2次電池を備える場合には、クラッキング部20における滞留時間が所望の状態により近づくように、クラッキング部20に供給するガソリン量を調節することができる。すなわち、負荷変動に伴うガソリン供給量の変動をより小さく抑えるよう制御して、負荷変動に伴ってクラッキング部20における滞留時間が非所望の程度に変動するのを抑え、燃料電池40における（供給水素量に起因する）発電量の過不足は、2次電池を用いて調整することが可能となる。

【0209】既述したように、改質器36の上流側にクラッキング部を設けることによって、ガソリンのように炭素数の大きい高級炭化水素系燃料を、より炭素数の小さい炭化水素系燃料に分解して、改質器36における煤形成を抑えると共に改質反応の効率を向上させる効果が得られる。ここで、クラッキング部における反応温度が改質器36における反応温度よりも充分に高い場合には（既述した実施例では、通常は、クラッキング部20は800～1000℃程度、改質器36は600℃程度に制御される）、クラッキング部から排出される改質燃料気体が改質器36に持ち込む熱によって、改質器36で進行する水蒸気改質反応で要する熱の少なくとも一部を賄うことが可能となる。

【0210】また、クラッキング部内の温度と改質器36における反応温度との差が大きいときには、改質燃料

気体をそのまま改質器36に供給すると、改質器内の温度を上昇させすぎるという不都合が生じるおそれがある。このような場合には、高温の改質燃料気体を改質反応に供するのに適した温度にまで降温させるために、改質器36内の上流側に水を噴霧することとしても良い。特に、図2（C）に示したように、水蒸気改質反応で要する水を改質器に追加供給する場合には、追加供給する水の少なくとも一部を、改質燃料気体を冷却するために液体のまま改質器内に噴霧することで、追加供給する水を気化させるのに要するエネルギーを削減することができる。これにより、装置全体のエネルギー効率を向上させることができる。

【0211】なお、ガソリンなどの炭化水素系燃料を分解するためのクラッキング部における構成は、既述した実施例で示した構成に限るものではない。既述した実施例では、炭化水素系燃料を熱分解することとし、熱分解で要する熱は、炭化水素系燃料の一部を燃焼させて得る構成を示した。また、本発明の燃料改質装置を備える燃料電池装置における所定の高温部で生じる熱を、上記熱分解で利用する構成を示した。さらに、低温プラズマを利用して分解反応を促進する構成を示した。このように、炭素数の大きな炭化水素系燃料を、改質反応に先立って、充分に炭素数の小さい炭化水素系燃料に分解することができれば、異なる構成であっても同様の効果を得ることができる。

【0212】（6）気相反応抑制型改質器：既述した実施例では、ガソリンのような高級炭化水素系燃料を改質するのに先立って、この燃料を予め分解することによって、煤形成を抑えると共に改質反応の効率を確保し、高級炭化水素系燃料を改質することによって生じる問題を抑えた。高級炭化水素系燃料を改質する際には、既述したように、メタノールなどの燃料を改質する場合に比べて改質反応が進行する際の温度が高いため、一酸化炭素やメタンなど非所望の成分を生じる反応の活性が高くなるという問題をさらに生じるが、以下に、第2実施例として、改質反応に伴うこのような非所望の反応を抑える構成について説明する。

【0213】図16は、第2実施例の燃料電池装置410の構成を表わす説明図である。水素を生成する改質反応（水蒸気改質反応および部分酸化反応）は、炭化水素系燃料を構成する分子と水蒸気、あるいはさらに酸素とが、改質器内に配設された触媒上で反応することによって進行する。これに対して、上記した一酸化炭素やメタンを生じる反応は、改質器内の気相中で主として進行する。第2実施例の燃料電池装置410は、このような気相中での反応を抑制した気相反応抑制型改質器436を備えている。気相反応抑制型改質器436は、蒸発器34から燃料ガス流路474を介して、水蒸気とガソリンガスからなる混合気体の供給を受けて改質反応を進行し、改質反応で生じた水素リッチガスを、ガス流路76

を介してシフト部3に供給する。燃料電池装置410において、気相反応抑制型改質器436以外の構成は、図1の燃料電池装置10と同様であるため、詳しい説明は省略する。

【0214】改質器内部において、混合気体が改質反応を進行しつつ通過する際には、改質器の内壁面上、すなわち改質触媒上に、境界層が形成される。境界層においては、混合気体の流速が遅く、改質反応に供される反応物質および改質反応で生成した生成物質が高濃度に存在することになる。本実施例の気相反応抑制型改質器436は、改質触媒上に形成される境界層をより薄くすることによって、改質触媒上での物質拡散を促進している。物質拡散が促進されることで、触媒上において、改質反応で生成された生成物質と、改質反応に供される反応物質との入れ替えが促進され、触媒上で進行する改質反応が活発化される。

【0215】改質器内で進行する反応の中で、触媒上で進行する改質反応は、上記一酸化炭素やメタンを生じる気相中の反応に比べて反応速度が速い。したがって、上記したように境界層を薄くして物質拡散を促進し、触媒上で進行する改質反応を活発化することによって、気相中で起こる非所望の反応が問題となる程度に進行する前に、改質反応をより速く所望の程度に進行させることが可能となる。さらに、本実施例の気相反応抑制型改質器436では、その形状の設定や、供給する混合気体の流速制御によって、気相反応抑制型改質器436における滞留時間をより短くし（空間速度をより大きくし）、気相中で起こる上記非所望の反応が問題となる程度に進行する前に、改質反応を経て生成された水素リッチガスを外部に排出する構成となっている。

【0216】ここで、気相反応抑制型改質器436において境界層を薄くするための具体的な構成としては、例えば、気相反応抑制型改質器436の内部をハニカムで構成し、ハニカム表面に改質触媒を担持させる場合に、ハニカムのメッシュをより細かく形成する構成を挙げることができる。ハニカムのメッシュをより細かくすることによって改質器内の流路断面積がより小さくなり、触媒の表面積に比べて、改質反応に供されるガスが通過する空間の体積が相対的に小さくなることで、境界層を薄くすることができる。あるいは、改質器全体の流路長（L）と改質器全体の断面の直径（D）との比であるL/D値をより小さくする場合にも、境界層を薄くする効果を高めることができる。このように、気相反応抑制型改質器436を、L/D値がより小さくなる形状とする場合には、気相反応抑制型改質器436内において、発熱反応である部分酸化反応が活発に進行する領域と、吸熱反応である水蒸気改質反応が進行する領域とがより近くなり、改質反応が進行する効率が高まることによって、滞留時間をより短くすることが可能となる。

【0217】なお、このように境界層を薄くしたり、滞

留時間を短く（空間速度を大きく）することによって、気相反応を抑える効果がどの程度得られるかは、改質器から排出される水素リッチガスの成分を調べることによって知ることができる。すなわち、上記気相反応は平衡反応であり、所定の容積を有する反応槽（改質器）が所定の温度であるときに、上記平衡反応によって生じる一酸化炭素やメタンの量は平衡論的に定まる。したがって、この平衡論的に定まる値と、気相反応抑制型改質器436から実際に排出されるガス中の一酸化炭素やメタンの量（濃度）として検出される値とを比較することで、気相反応を抑える効果の程度を知ることが可能となる。したがって、気相反応抑制型改質器436においては、気相反応を抑える効果が所望の程度に得られるように、予め、メッシュの細かさやL/D値などの形状、あるいは滞留時間（空間速度）などの運転状態を設定しておけばよい。なお、気相反応抑制型改質器436において滞留時間を制御するための構成は、クラッキング部20における滞留時間を制御する方法として既述した種々の方法（例えば、供給水蒸気量や供給空気量、あるいは圧力の制御など）を適用可能である。また、気相反応抑制型改質器436における全体の滞留時間を制御するだけでなく、既述したクラッキング部20に適用したように、反応停止ガス（水を噴霧する構成を含む）を下流側で供給することによって、非所望の成分を生成する反応が非所望の程度に進行してしまう前に、改質器から水素リッチガスの排出を促す構成としても良い。

【0218】なお、上記のように、境界層を薄くして気相反応を抑える効果に基づいて形状や運転条件を設定する気相反応抑制型改質器436を設ける場合において、改質反応の効率に基づいて運転状態を設定する通常の改質器をさらに備える構成としても良い。このような場合にも、気相反応抑制型改質器436を用いることで気相反応を抑える効果と、併設する通常の改質器をより小型化することができるという効果を得ることができる。最終的に得られる水素リッチガスにおいて、気相反応を抑えることにより得られる効果の程度や、改質反応の効率等を考慮して、適宜、装置全体の構成（気相反応抑制型改質器と通常の改質器との大きさのバランスなど）を設定すればよい。

【0219】また、上記気相反応抑制型改質器436を備える燃料電池装置において、図4に示した燃料電池装置10Aが備える混合部35と同様の構成を設けることとしても良い。すなわち、気相反応抑制型改質器436に先立って混合部を設け、予め気化したガソリンおよび水蒸気（あるいは、さらに空気）を、上記混合部において混合した後、気相反応抑制型改質器436に供給することとしても良い。このような構成とすれば、気体の状態のガソリンおよび水蒸気を混合するため、より均一な混合気体を改質反応に供することができる。

【0220】（7）燃料直接供給型燃料電池：

(7-1) 燃料電池装置510の構成：既述した実施例では、燃料電池として固体高分子型燃料電池を備えることとしたが、もとより、異なる種類の燃料電池を用いる場合にも、本発明を適用することで同様の効果を得ることができる。ここで、燃料電池の中には、炭化水素系燃料を直接に燃料電池に供給する構成を有するものが知られている。このような燃料直接供給型の燃料電池においても、クラッキング部を併設し、燃料電池に炭化水素系燃料を供給するのに先立って炭化水素系燃料を分解することで、煤形成の抑制などの効果を得ることができる。以下に、燃料直接供給型燃料電池と共にクラッキング部を備える燃料電池装置を、第3実施例として示す。

【0221】図17は、第3実施例の燃料電池装置510の要部の構成を表わす説明図である。ここでは、既述した実施例の燃料ガス流路74と同様の燃料ガス流路574から、クラッキング部20に対して、高級炭化水素系燃料を含有する昇温された混合気体が供給される。クラッキング部20は、既述した実施例と同様の構成を有する。クラッキング部20において、より炭素数が小さい状態に分解された炭化水素系燃料は、燃料ガス流路578を介して、燃料直接供給型燃料電池である燃料電池540に供給される。

【0222】燃料直接供給型燃料電池である燃料電池540として用いることができる燃料電池としては、例えば、電解質内を移動するイオン導電種が酸化物イオンである固体酸化物電解質型燃料電池を挙げることができる。なお、燃料電池に対して燃料を直接供給するという構成は、高温型燃料電池において可能となるものであり、イオン導電種がプロトンである固体電解質型燃料電池や、熔融炭酸塩型燃料電池などを用いることも可能である。

【0223】本実施例の燃料電池540は、内部に改質触媒を備えており、クラッキング部20で分解された炭化水素系燃料は、燃料電池540内に供給されると、上記改質触媒上で進行する改質反応に供されて水素を生成し、この水素は、アノードで進行する電気化学反応に供される。このように燃料電池内部で改質反応を行なう構成においては、発電に伴って生じる熱を改質反応に利用することが可能となり、発電に伴って生じる熱を効率よく利用できると共に、改質反応で要する熱を供給するために消費するエネルギーを削減することができ、燃料電池装置におけるエネルギー効率を向上させることができる。

【0224】以上のように構成された第3実施例の燃料電池装置510によれば、炭化水素系燃料を燃料電池540に供給するのに先立って、クラッキング部20において炭化水素系燃料の分解を行なうため、燃料電池540内で非所望の煤形成を抑えることができる。高級炭化水素（芳香族炭化水素を含む）は、高い吸着性を有するため、高級炭化水素系燃料をそのまま燃料電池に供給すると、燃料電池を構成する金属および金属酸化物表面で

は、炭化水素系燃料の濃度が非所望の程度に高くなってしまう。したがって、このような金属および金属酸化物から成る触媒上（あるいは電解質上）では、所望の酸化反応（電極反応）に比べて煤を形成する反応が活発に進行するようになり、触媒表面が煤で覆われてしまい、触媒によって促進される所望の電極反応の活性の低下が引き起こされる。また、燃料電池内に改質触媒を備える場合には、この改質触媒表面も煤で覆われ、改質反応の活性が低下するおそれがある。本実施例のようにクラッキング部20を設け、燃料電池に供給するのに先立って、炭化水素系燃料を、より炭素数の小さな炭化水素系燃料に分解することによって、煤形成が抑えられ、電池性能の低下を防ぐことができる。さらに、炭素数がより小さくなるように炭化水素系燃料を分解することで、この炭化水素系燃料を用いて燃料電池内で進行する改質反応（水蒸気改質反応および／または部分酸化反応）が、より効率よく進行するようになり、燃料電池における発電効率が向上するという効果も得られる。

【0225】なお、既述した実施例と同様に、燃料ガス流路574から供給する混合気体中に予め水蒸気を含有することとしても良いが、クラッキング部20で炭化水素系燃料の分解を行なった後で、さらに水蒸気を加えて燃料電池540に供給することとしても良い。このように充分量の水蒸気を確保することで、燃料電池540内で進行する水蒸気改質反応に要する水蒸気量を充分に確保することができると共に、燃料電池540内部での煤形成を抑えることができる。

【0226】あるいは、燃料電池540内では、水蒸気改質反応によって炭化水素系燃料の改質を行なうことなく、部分酸化反応だけによって改質を行なうこととしても良い。あるいは、後述するように、クラッキング部20で分解した炭化水素系燃料を、そのまま電気化学反応で利用する構成とすることも可能である。このような構成とすれば、燃料電池内に水蒸気を供給することなく燃料電池装置を運転することが可能となる。このような構成とすれば、燃料電池装置において余剰の水を回収するための構造を設ける必要がないため、装置全体の構成を簡素化することができると共に、寒冷時に燃料電池装置内部で水が凍結することに起因して不都合が生じるおそれがない。

【0227】(7-2) 燃料電池装置510の始動時の動作：燃料電池装置510のように、燃料直接供給型燃料電池の上流側にクラッキング部20を設ける構成によれば、クラッキング部において炭化水素系燃料を酸化・分解することによって、燃料電池装置510の始動時間（暖機時間）を短縮することが可能となる。以下に、燃料電池装置510の始動時の動作について説明する。

【0228】燃料電池装置の始動時には、燃料電池において定常状態で発電可能となるように、燃料電池を始めとする各部を、速やかに所望の動作温度にまで昇温させ

る必要がある。本実施例の燃料電池装置510では、その始動時には、クラッキング部20に対して炭化水素系燃料と共に供給する酸素量の割合を、通常の発電時に比べて増やすことによって、暖機時間の短縮を図っている。すなわち、クラッキング部20では、炭化水素系燃料と共に供給する酸素の割合によって、内部で進行する反応の種類を制御している。供給する酸素の割合が所定の範囲のときには、クラッキング部20では炭化水素系燃料の部分酸化反応が進行し、既述したようにこの部分酸化反応で生じた熱を用いて炭化水素系燃料の分解を行なうことが可能となる。ここで、供給する酸素の割合が増えるほど、部分酸化反応が活発化するが、本実施例では、燃料電池装置510の始動時には、クラッキング部20に供給する酸素量を十分に多くして、部分酸化反応の活性を高め、炭化水素系燃料の大部分を、部分酸化反応によって水素および一酸化炭素と成すよう制御している。

【0229】炭化水素系燃料と共にクラッキング部20に供給する酸素量は、既述したように、「クラッキング部に供給されるガス中の炭化水素系燃料に含まれる炭素原子のモル数」に対する「供給されるガス中の酸素原子のモル数」の割合であるO/C値によって制御することができる。本実施例では、燃料電池装置510の始動時には、上記O/C値を略1となるように制御することで部分酸化反応を活発に進行させ、炭化水素系燃料から積極的に水素と一酸化炭素とを生成している。このように、供給酸素量を増やして、定常状態よりも活発に部分酸化反応を進行させると共に、吸熱反応である炭化水素系燃料の分解反応を抑えることによって、クラッキング部20は速やかに昇温することができる。また、クラッキング部20が昇温することで、クラッキング部20から燃料電池540に供給されるガスの温度もより上昇し、これによって燃料電池540の暖機が促される。

【0230】さらに、本実施例では、クラッキング部20で炭化水素系燃料から生成した上記水素と一酸化炭素とを、燃料電池540内部でさらに酸化させており、この酸化反応で生じる熱によっても、燃料電池540を加熱することができる。すなわち、燃料電池540内に、水素と一酸化炭素とが酸素と共に供給されると、水素と一酸化炭素との酸化反応がアノード側の触媒上で進行し、燃料電池540の内部で発熱が起こることによって燃料電池540の暖機を促進することができる。

【0231】このように、クラッキング部20に対する供給酸素量を増やすことによって、クラッキング部20内で進行する部分酸化反応の量が増大すると共に、燃料電池540内部においても、外部から供給する酸素を用いた酸化反応が積極的に進行するようになり、クラッキング部20および燃料電池540の暖機を促進し、始動時間を短縮することができる。ここで、燃料電池540が備える触媒上では、酸素の存在下で炭化水素系燃料を

酸化することも可能であるが、水素および一酸化炭素は、炭化水素系燃料に比べてはるかに酸化反応性が高いという性質を有している。したがって、本実施例のように、部分酸化反応によって炭化水素系燃料から生成した水素と一酸化炭素とを用いて酸化反応を行なわせることによって、より効果的に燃料電池540を昇温させることができる。

【0232】また、本実施例の燃料電池装置510によれば、上記した酸化反応によってクラッキング部20および燃料電池540の暖機を効果的に行なうことができるため、始動時に暖機を促すための特別な構成（加熱装置など）を設ける必要がない。このように効果的に暖機を行ない、より速く定常状態で発電可能となる構成は、燃料電池装置の停止と始動とを頻繁に行なう構成、例えば、燃料電池装置を電気自動車などの移動体の駆動用電源として用いる場合において特に有利である。

【0233】上記実施例では、始動時にクラッキング部20に供給する酸素量は、O/C値が略1になるように制御しており、このような値とすることで、通常は、クラッキング部20における部分酸化反応および燃料電池540における酸化反応を十分に進行させることが可能となる。しかしながら、燃料電池540内で上記酸化反応を進行させるために酸素が不十分となるおそれがある場合には、クラッキング部20の下流において、さらに酸素を加えることとしても良い。なお、クラッキング部20に供給する酸素量をさらに増やした場合には、クラッキング部20内では、部分酸化反応に代えて完全酸化反応が活発に進行するようになる。完全酸化反応が進行すると、クラッキング部20では水および二酸化炭素が生成されるようになり、これを用いて燃料電池540内でさらに酸化反応を進行させることはできない。したがって、燃料電池540を暖機する効率を確保するためには、クラッキング部20における完全酸化反応の活性が十分に抑えられるように、供給酸素量を制御する必要がある。もとより、燃料電池装置510の始動時ににおいて、クラッキング部20内で部分酸化反応を進行させようとする際には、これに先立ってまず完全酸化反応を行なわせて、クラッキング部20の内部温度を十分に昇温させることとしても良い。

【0234】上記動作によって、クラッキング部20および燃料電池540が所望の温度に昇温したときには、上記O/C値を値1より小さくし、上記部分酸化反応および完全酸化反応の活性を抑えると共に、酸化反応で生じた熱を利用して炭化水素系燃料の分解反応を行なわせる。また、燃料電池540に供給されるガス中に残留する酸素量が十分に抑えられるよう制御して、燃料電池540内において、外部から供給される酸素を用いた酸化反応に代えて電気化学反応を行なわせ、定常運転に移行することとすればよい。

【0235】なお、上記した第3実施例では、燃料電池

内部で炭化水素系燃料を改質する構成について示したが、炭化水素系燃料を、アノードにおいて電極活物質として直接利用するタイプの燃料電池を備える燃料電池装置において、クラッキング部を設ける構成としてもよい。このような場合にも、炭化水素系燃料を電気化学反応に供給するのに先立って炭化水素を分解して、より炭素数の小さな炭化水素系燃料とすることにより、燃料電池内部で煤が形成されるのを抑える等同様の効果を得ることができる。

【0236】また、図17に示した燃料電池装置510では、クラッキング部20は、燃料電池540とは別体で設けることとしたが、両者を一体とし、クラッキング部20を燃料電池540の内部に配設する（クラッキング部として機能する部位と、電気化学反応が進行する部位とを、十分に近接させて配設する）構成としても良い。このような構成とすれば、クラッキング部20において炭化水素系燃料の分解反応を行なう際に、燃料電池における発熱に伴って生じる熱を容易に利用することができるため、装置全体のエネルギー効率を向上させることができる。さらに、装置全体を小型化することが可能となる。また、このような場合には、電池反応から与えられる熱では不足する熱を補うためにクラッキング部内部で酸化反応を行なえば良いため、酸化反応で消費する炭化水素系燃料量を削減することができる。さらに、電気化学反応に供されるガス中で、酸化反応によって生じる成分であって電気化学反応に関与しないものの割合を抑えることができ、電池性能を向上させることができる。また、燃料電池540において発電が行なわれるときに、クラッキング部20によって燃料電池540の冷却を行なうことが可能となる。

【0237】以上本発明の実施例について説明したが、本発明はこうした実施例に何等限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内において種々なる状態で実施し得ることは勿論である。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の好適な一実施例である燃料電池装置10の全体構成を模式的に表わす説明図である。

【図2】燃料電池装置10を構成する各要部に対して各流体が供給される様子を模式的に表わす説明図である。

【図3】完全酸化部をさらに設ける様子を表わす説明図である。

【図4】燃料電池装置10Aの構成を表わす説明図である。

【図5】負荷の大きさと望ましいO/C値との関係を表わす説明図である。

【図6】クラッキング部容積が可変となるクラッキング部20Aの構成を表わす説明図である。

【図7】クラッキング部容積が可変となるクラッキング部20Bの構成を表わす説明図である。

【図8】クラッキング部20Bに備えられたマスク25

Aの形状を表わす説明図である。

【図9】クラッキング部容積が可変となるクラッキング部20Cの構成を表わす説明図である。

【図10】クラッキング部容積が可変となるクラッキング部20Dの構成を表わす説明図である。

【図11】変形例としての燃料電池装置110の構成を表わす説明図である。

【図12】変形例としての燃料電池装置210の構成を表わす説明図である。

【図13】変形例としての燃料電池装置310の構成を表わす説明図である。

【図14】反応停止ガスを用いる構成を表わす説明図である。

【図15】分解反応で要する熱を、熱交換器を介して供給する構成を表わす説明図である。

【図16】燃料電池装置410の構成を表わす説明図である。

【図17】燃料電池に炭化水素系燃料を直接供給する構成を表わす説明図である。

【符号の説明】

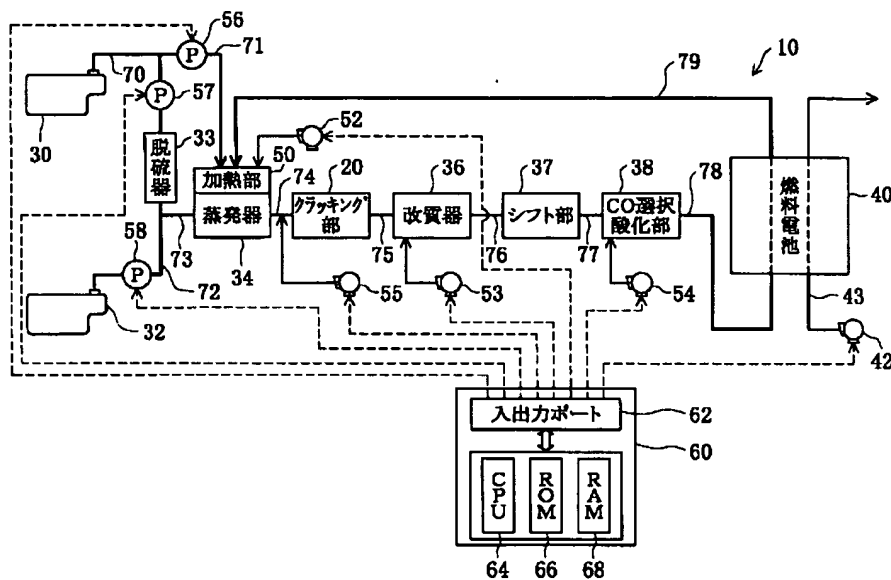
10, 10A, 110, 210, 310, 410, 510…燃料電池装置
20, 20A, 20B, 20C, 20D…クラッキング部
21…第1反応室
22…第2反応室
23…第3反応室
24, 26…反応室
25…可動式マスク
25A…マスク
30…ガソリタンク
32…水タンク
33…脱硫器
34…蒸発器
35…混合部
36…改質器
37…シフト部
38…CO選択酸化部
40, 540…燃料電池
42…ブロワ
43…酸化ガス流路
44…カソードオフガス流路
45…流路調整弁
46…分岐路
50…加熱部
52, 53, 54, 55…ブロワ
56, 57, 58…ポンプ
60…制御部
62…入出力ポート
64…CPU

66…ROM
 68…RAM
 70…燃料流路
 71…分岐路
 72…水流路
 73…燃料流路
 74, , 474, 574…燃料ガス流路
 75…燃料ガス流路
 76…ガス流路
 77…流路
 78, 578…燃料ガス流路
 79…アノードオフガス流路

80A~82A…ガス排出路
 80B~82B…バルブ
 86…反応室
 87A…マスク
 88A, 89A, 90A…ガス分岐路
 88B, 89B, 90B…バルブ
 88C, 89C, 90C…ガス分岐路
 88D, 89D, 90D…バルブ
 95…排ガス路
 96, 98…流路調整弁
 97, 99…分岐路
 436…気相反応抑制型改質器

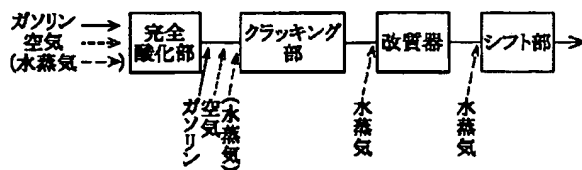
【図1】

【図8】

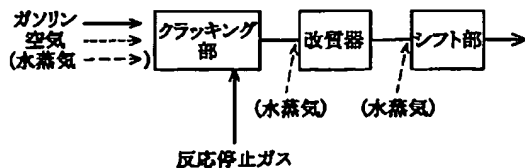
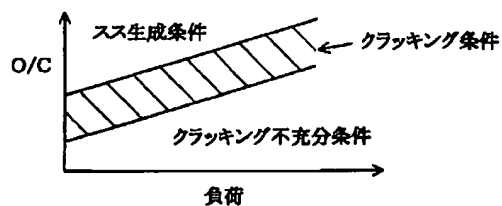


【図3】

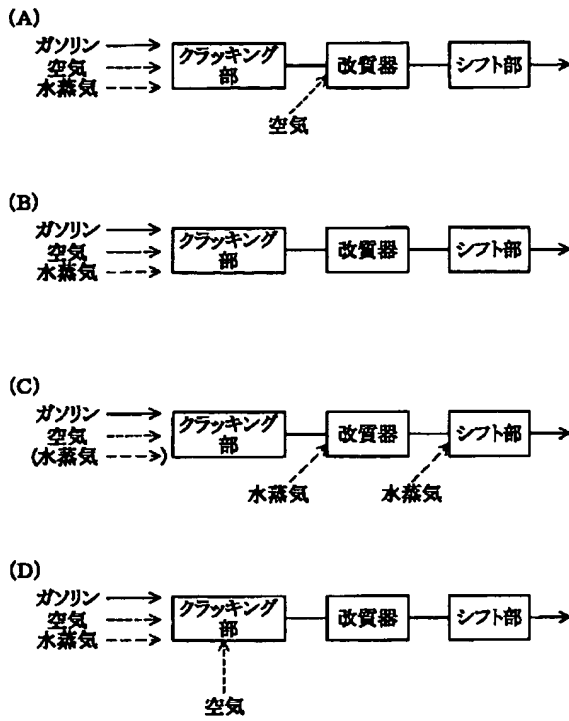
【図5】



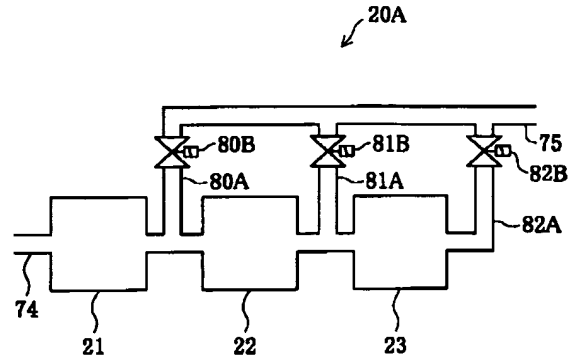
【図14】



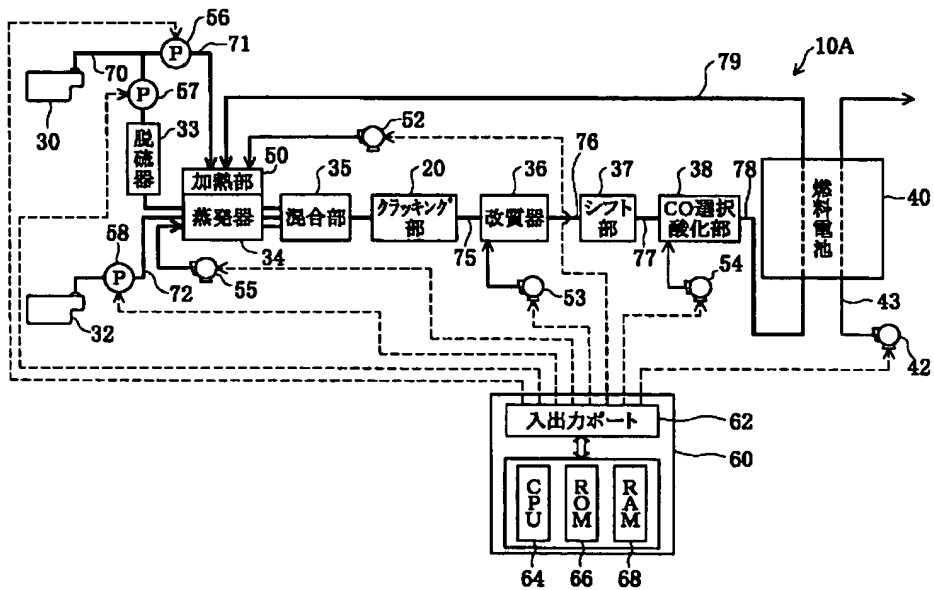
【図 2】



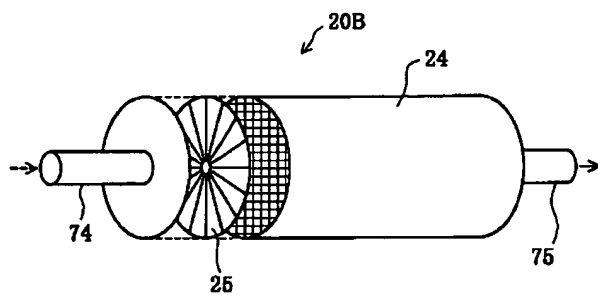
【図 6】



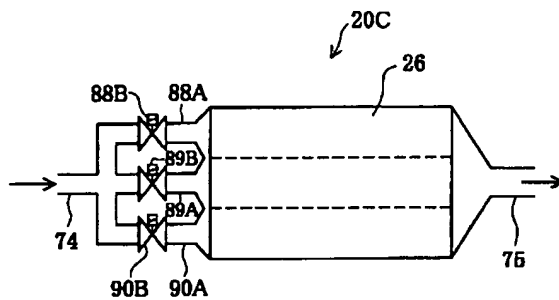
【図 4】



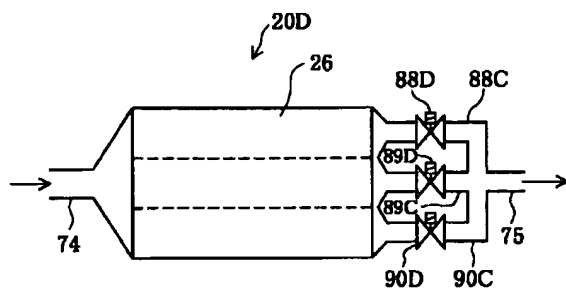
【図7】



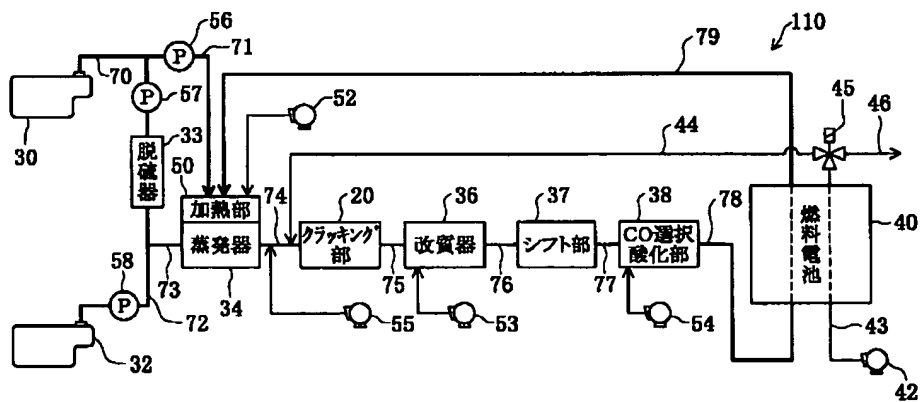
【図9】



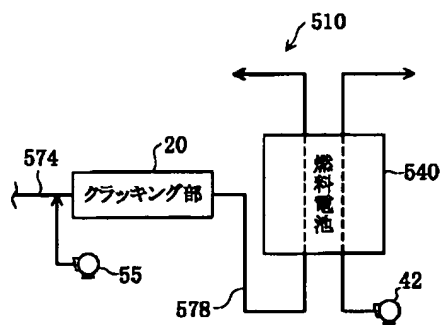
【図10】



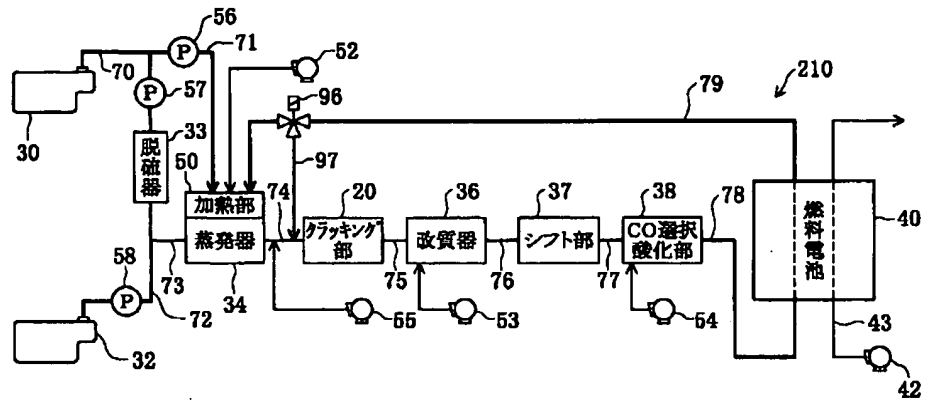
【図11】



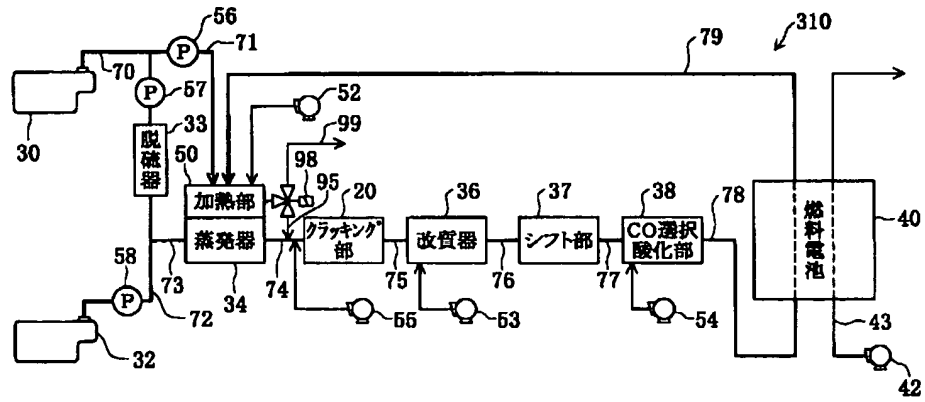
【図17】



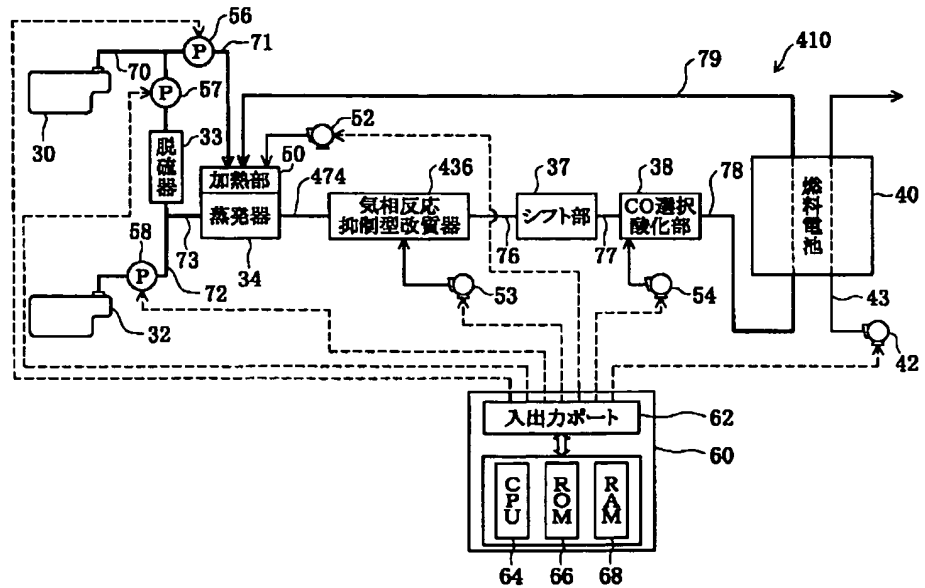
【図12】



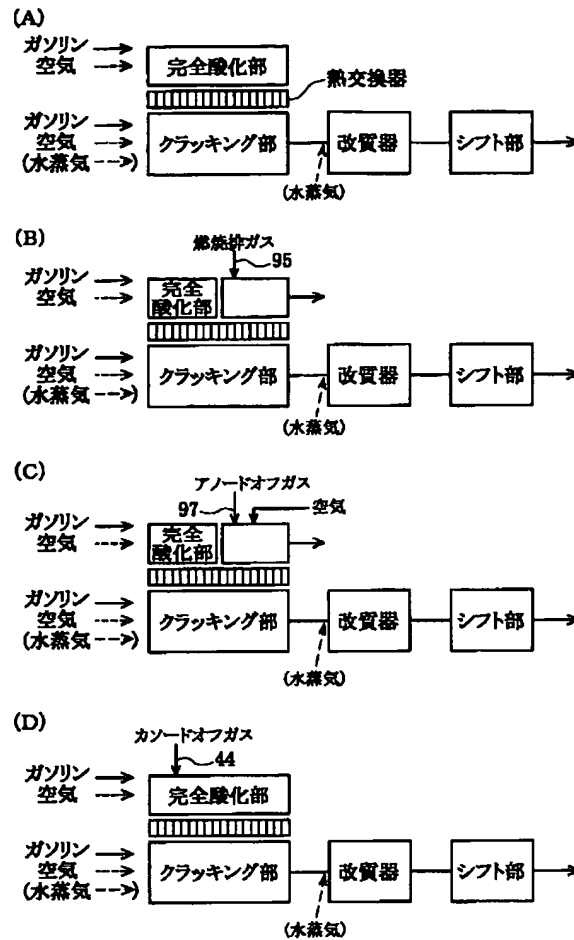
【図13】



【図16】



【図15】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7	識別記号	F I	テーマコード (参考)
H 0 1 M 8/06 8/10		H 0 1 M 8/06 8/10	B
(72) 発明者 井口 哲 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内		(72) 発明者 西川 武志 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内	
(72) 発明者 青山 智 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内		(72) 発明者 久保 修一 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番 地の1 株式会社豊田中央研究所内	
(72) 発明者 沼田 耕一 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内		(72) 発明者 山崎 哲 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番 地の1 株式会社豊田中央研究所内	
(72) 発明者 國武 和久 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内			

Fターム(参考) 4G01 EA03 EA06 EA07 EB01 EB03
EB11 EB31 EB32 EB42 EB44
EB46 EC08
4G140 EA03 EA06 EA07 EB01 EB03
EB11 EB31 EB32 EB42 EB44
EB46 EC08
4H013 AA02 AA04
5H026 AA06
5H027 AA06 BA01 BC19 KK41 MM01
MM13

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.